



Lateral spredning og emission af gas fra en gammel losseplads

Christophersen, Mette

Publication date:
2000

Document Version
Publisher's PDF, also known as Version of record

[Link back to DTU Orbit](#)

Citation (APA):
Christophersen, M. (2000). *Lateral spredning og emission af gas fra en gammel losseplads*. Institut for Miljøteknologi, Danmarks Tekniske Universitet.

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Technical University of Denmark

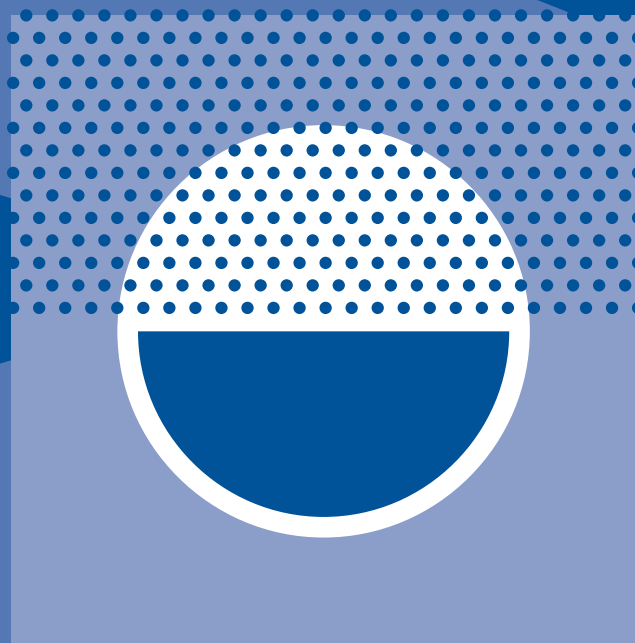
Danmarks Tekniske Universitet

Lateral spredning og emission af gas fra en gammel losseplads

DTU



Mette Christophersen



Institut for Miljøteknologi
Department of Environmental Science and Engineering

Lateral spredning og emission af gas fra en gammel losseplads

Mette Christophersen

Ph.d. afhandling, oktober 2000

Institut for Miljøteknologi

Danmarks Tekniske Universitet

Lateral spredning og emission af gas fra en gammel losseplads

Omslag: Birte Brejl

Tryk: DTU tryk

Miljø & Ressourcer DTU

ISBN 87-89220-66-8

Denne afhandling vil være tilgængelig som pdf-fil, der kan downloades fra instituttets hjemmeside på: www.er.dtu.dk

Miljø & Ressourcer DTU

Biblioteket

Bygningstorvet, Bygning 115, Danmarks Tekniske Universitet

DK-2800 Kongens Lyngby

Telefon:

Direkte: (+45) 45 25 16 10

(+45) 45 25 16 00

Fax: (+45) 45 93 28 50

E-mail: library@er.dtu.dk

Forord

Denne afhandling er udarbejdet som en del af erhvervelsen af ph.d.-graden. Ph.d.-arbejdet er udført ved Institut for Miljøteknologi, Danmarks Tekniske Universitet i perioden februar 1995 til april 2000, og har været finansieret af Danmarks Tekniske Universitet.

Afhandlingen består af en dansk sammenfatning af de udførte forsøg og de nedenstående artikler. Artiklerne er ikke inkluderet i denne www-version, men kan fås ved henvendelse til biblioteket ved Miljø & Ressourcer DTU, Bygningstorvet, Bygning 115, Danmarks Tekniske Universitet, 2800 Kgs. Lyngby (library@er.dtu.dk).

- I: Christophersen, M., Linderød, L., Jensen, P.E. & Kjeldsen, P. (2000). Methane Oxidation at Low Temperatures in Soil Exposed to Landfill Gas. *Journal of Environmental Quality* **29**, 1989-1997.
- II: Christophersen, M. & Kjeldsen, P. (2001). Lateral gas transport in soil adjacent to an old landfill: Factors governing gas migration. *Waste Management & Research* **19**, 579-594.
- III: Christophersen, M., Holst, H., Chanton, J. & Kjeldsen, P. (2001) Lateral gas transport in soil adjacent to an old landfill: Factors governing emission and methane oxidation. *Waste Management & Research* **19**, 595-612.
- IV: Poulsen, T.G., Christophersen, M., Moldrup, P. & Kjeldsen, P. (2001) Modelling lateral gas transport in soil adjacent to an old landfill. *Journal of Environmental Engineering* **127**, 145-153.

Der er i sammenfatningen henvist til artiklerne for yderligere uddybning og dokumentation af resultaterne. Ved henvisning til artiklerne i afhandlingens tekst indgår, udover forfatternavne og årstal, de tilhørende romertal I-IV.

I forbindelse med denne afhandling, vil jeg gerne rette en stor tak til min vejleder lektor Peter Kjeldsen (Danmarks Tekniske Universitet, Institut for Miljøteknologi), der under hele forløbet har skabt gode rammer for mit arbejde, og som har været en inspirerende og engageret vejleder. Vi har haft mange udbytterige faglige diskussioner.

Jeg vil også gerne sige tak til Charlotte Scheutz for gode diskussioner og kritisk gennemlæsning af både artikler og afhandling. Ligeledes takkes Dorthe Lærke Jensen for kritisk gennemlæsning af afhandlingen.

Derudover skylder jeg Haraldur Hannesson, Jonas Hilling og Janus Kirkeby, som i perioder har været tilknyttet projektet, tak for stor hjælp i forbindelse med det eksperimentelle arbejde. Torben Dolin har lavet figurerne til såvel afhandlingen som artiklerne. Grete Hansen og Helle Offenbergs har skaffet litteratur hjem og har kritisk gennemlæst litteraturlisten. Alle tre har været til stor hjælp for mig.

Desuden takkes en lang række ansatte og studerende ved Institut for Miljøteknologi for at have bidraget til et godt arbejdsmiljø.

Endelig en særlig varm tak til min familie; min mand Claus Dam Christophersen for hans store forståelse og hjælp i forbindelse med afslutningen af dette arbejde, og mine børn Laura og Mads, som på deres helt egen måde har vist forståelse.

Mette Christophersen

Sammenfatning

Når organisk affald bliver deponeret på lossepladser sker der en anaerob omsætning, der fører til dannelse af lossepladsgas, som hovedsagelig består af methan og kuldioxid. Spredning af lossepladsgas i omgivelserne kan føre til forskellige effekter, hvor drivhuseffekten og eksplosionsfaren er de væsentligste. Over en 100 års periode har methan et 21 gange højere potentiale for opvarmning sammenlignet med kuldioxid, og methan kan eksplodere i koncentrationsintervallet 5-15% i luft, hvis det bliver antændt.

Der er udført mange undersøgelser af lossepladsgasemission gennem toplaget på lossepladser, men meget få har set på den laterale spredning af lossepladsgas. I Nordeuropa er mange lossepladser placeret i gamle råstofgrave. Især de ældre pladser har ingen membraner, og dermed er der en direkte kontakt mellem affaldet og den omkringliggende jord. Ofte er affaldet blevet kompakteret, og der er blevet brugt lavpermeable lag som daglig afdækning. Dermed kan der dannes horisontale lavpermeable lag inde i lossepladsen. Alle disse omstændigheder er med til at fremme den laterale spredning af lossepladsgas.

En gennemgang af litteraturen viste, at både diffusiv og advektiv flow har betydning for spredningen af lossepladsgas i mange tilfælde. Derudover har temperatur, vandindhold og atmosfæretryk betydning for spredning og emission af lossepladsgas. Det er i mange tilfælde vist, at methanotrofe bakterier i toplug på lossepladser kan oxidere store mængder methan, men der er ikke udført forsøg ved lave temperaturer.

Formålet med dette projekt har været at forøge forståelsen af de processer og faktorer, der har indvirkning på den laterale transport og efterfølgende emission af lossepladsgas fra gamle lossepladser uden membraner. Specielt har forsøgene været rettet mod at kortlægge de mest betydende faktorer og at vurdere methanoxidationens betydning.

Forsøgene blev udført ved Skellingsted losseplads, som er placeret i en gammel grusgrav, der blev fyldt med affald fra 1971-90. Der blev opstillet to måletransecter, som startede oppe på lossepladsen og fortsatte vinkelret på lossepladskanten ud i den omkringliggende jord. Hver transect bestod af 9 målestationer, og hver målestation bestod af et stationært fluxkammer, gasprober til måling af koncentrationer og overtryk i 6 dybder ned til 1 m under terræn og prober til måling af vandindhold i 5 dybder ned til 1 m under terræn. Der blev udført målerunder ca. hver 14. dag fra maj 1997 til maj 1998.

Generelt blev der målt meget varierende koncentrationer af lossepladsgas i jorden fra målerunde til målerunde, og det viser, at den laterale gasspredning var et meget dynamisk system. Der var en statistisk signifikant sæsonvariation i methankoncentrationerne 1 m u.t. med høje koncentrationer om vinteren og lave om sommeren, og omvendt for

kuldioxid ved stationerne tæt på lossepladsen. Denne variation skyldes oxidation af methan til kuldioxid. I vinterperioden blev der målt signifikant højere koncentrationer af både methan og kuldioxid længere væk fra lossepladsen, og det skyldes, at specielt de øverste jordlag havde et højere vandindhold om vinteren. Det høje vandindhold nedsatte den vertikale og øgede den laterale gastransport.

Der var meget store variationer i emissionerne af methan og kuldioxid gennem den et år lange måleperiode. Den maksimale methanflux var $189 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$, og de gennemsnitlige fluxe ved hver station lå mellem $<0,5$ og $25 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$. Den maksimale kuldioxidflux var $205 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$, og gennemsnittet lå mellem 5 og $69 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$ ved de enkelte stationer. Disse fluxe er meget lig fluxene, som er målt på andre ældre europæiske lossepladser uden gasindvinding. Der var en signifikant sæsonvariation i emissionerne med lave fluxe af methan om sommeren og signifikant højere methanfluxe om vinteren. Der var generelt altid en højere flux af kuldioxid end af methan, og for kuldioxid var sæsonvariationen omvendt dvs. høje fluxe om sommeren og lave fluxe om vinteren. Dette skyldes methanoxidationens afhængighed af temperaturen.

Gennem hele måleperioden blev der målt overtryk i jorden i området, som var påvirket af lossepladsgas, og det indikerede, at advektiv flux havde betydning for gastransporten. Dette er i overensstemmelse med beregninger som viste, at i en sandet jord som ved Skellingsted losseplads, er advektiv flux en meget vigtig proces. Selv ganske små trykforskelle kan give advektive flux større end den diffusive flux.

For bedre at kunne vurdere hvilke faktorer, der havde betydning for fluxene, blev der udført kovariansanalyser, som kan inkludere både kvalitative og kvantitative variable. Disse analyser viste, at 82% af variationerne i kuldioxidfluxene ved det ene transect gennem den et år lange måleperiode kunne beskrives med en model, der inkludere variabelen "station", som siger noget om afstanden til lossepladsen, og gaskoncentrationerne, vandindholdet og overtrykket i de øverste jordlag, samt temperaturen, atmosfæretryk og nedbør. Vandindholdet var den af faktor, der beskrev den største del af variationerne i fluxene. Statiske analyser på methanfluxene gav ikke brugbare resultater pga. mange værdier under detektionsgrænsen på $0,5 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$.

Der blev udført intensive målinger af emission og gas i jorden gennem to døgn på baggrund af prognosen om, at et lavtryk ville passere Danmark. Disse målinger viste, at der var en meget klar sammenhæng mellem koncentrationerne i jorden, emissionerne og faldet i atmosfæretryk. I jorden ændrede specielt koncentrationen af methan sig meget indenfor kort tid. Ændringerne i fluxene af både methan og kuldioxid var også store. Koncentrationerne og fluxene steg mens atmosfæretrykket faldt. Som eksempel steg fluxen af methan fra under detektionsgrænsen til $196 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$ ved stationen 11 m fra lossepladskanten. Dette viste, at lateral transport og efterfølgende emission af losse-

pladsgas er et meget dynamisk system. Det er derfor meget svært at konkludere noget vedrørende risiko for gasekspllosioner ud fra nogle enkelte gasmålinger ved en losseplads.

Ved Skellingsted losseplads var der mange indikationer på methanoxidation: i) CH_4/CO_2 -forholdet faldt ud gennem transecterne og op gennem jordprofilet, ii) der blev observeret nitrogenkoncentrationer højere end atmosfærens og iii) jorden var varmere i områder, hvor der foregik methanoxidation. Om sommeren blev der ikke målt methanfluxe men derimod høje kuldioxidfluxe. Der blev udført nogle boksregninger til estimation af methanoxidationen i den øverste meter af jordprofilet. Beregningerne blev udført ud fra de målte fluxe og koncentrationerne af methan og kuldioxid 1 m u.t. og under forudsætning af, at der ikke skete opløsning af kuldioxid i porevandet, og at der ikke blev dannet gas i jorden. Beregningerne viste, at al methanen blev oxideret om sommeren. På årsbasis blev 89% af den laterale spredte methan oxideret. Isotopanalyser af methanen ved en analyserunde antydede dog, at den procentvise methanoxidation blev overestimeret ved box-beregningerne for de analyserunder, hvor der blev målt methanfluxe.

I laboratoriet blev der udført batchforsøg med tre jorde fra Skellingsted med forskelligt indhold af organisk stof for at undersøge potentialet for methanoxidation ved lave temperaturer og ved forskellige vandindhold. Den højeste oxidationsrate i forsøgene var $1,17 \mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{h}$ ved 15°C , hvilket antyder, at jorden ved Skellingsted var meget effektiv til at oxidere methan. Selv ved 2°C blev methan oxideret i alle jordene, og beregninger viste, at også om vinteren er det muligt, at al methan fra ældre lossepladser i f.eks. Danmark kan blive oxideret. Batchforsøgene viste også, at vandindholdet var den vigtigste faktor for methanoxidationen i jord fra Skellingsted losseplads.

De målte gaskoncentrationer og fluxe blev brugt som input til en numerisk gastransport model. Modellen blev brugt til at evaluere gaskoncentrationernes og fluxenes følsomhed overfor: methanoxidation, diffusion, gaspermeabilitet, atmosfæretryk og vandindhold. Simulationerne viste, at både koncentrationerne i jorden og fluxene var mest følsomme overfor gaspermeabiliteten. Gaspermeabiliteten afhænger af vandindholdet, som derfor er en meget vigtig faktor, hvilket er i overensstemmelse med de statistiske analyser. For koncentrationerne var ændringer i det volumetriske vandindhold den næstvigtigste parameter efterfulgt af methanoxidation, hvorimod ændringer i atmosfæretrykket havde mindre indflydelse. Diffusion havde faktisk ingen indflydelse overhovedet – hverken på koncentrationerne eller på fluxene, hvilket er i overensstemmelse med beregninger, hvor diffusiv og advektiv methanfluxe blev sammenlignet. Ændringer i atmosfæretrykket havde større indflydelse på fluxene end på koncentrationerne og var den næstvigtigste parameter for fluxene. Udsvingene i følsomheden var størst under hurtige ændringer i atmosfæretrykket. Dette indikerer at ændringer i atmosfæretrykket havde større

betydning end det absolutte tryk, hvilket var i overensstemmelse med målingerne under lavtrykspassagen. Følsomheden overfor methanoxidation var størst om sommeren, og methanoxidation havde større indflydelse på fluxene end på koncentrationerne.

Summary

When organic waste is disposed of at landfills, the wastes will be anaerobic degraded under the production of landfill gas, which mainly consist of methane and carbon dioxide. The migration and emission of landfill gas may potentially lead to negative effects in the surroundings, where the explosion hazards and the global climate effects are believed to be the main environmental hazards. Over a time period of 100 years, the global warming potential for methane is 21 times the potential for carbon dioxide. Methane can explode in the 5-15% concentration range if initiated by an energiser.

Many investigations of landfill gas emission through top covers of landfills have been conducted, but very few have investigated the lateral landfill gas migration. In northern Europe many landfill are situated in old gravel pits. Especially the old landfill sites are unlined, and there is direct contact between the waste and the surrounding soil. At many landfills waste has been compacted and heavy soil has often been used as a daily cover. This can create horizontal barriers within the waste. All these circumstances encourage lateral gas migration.

A review of the literature showed that both diffusive and advective flows are important for the migration of landfill gas. Temperature, soil moisture content and barometric pressure are also important for the migration and emission of landfill gas. Landfill cover soils provide a suitable environment where the transformation of methane to carbon dioxide, by means of methane oxidation can occur, and high capacity for methane oxidation has been observed. However experiments have not been conducted at low temperatures.

The objective of this study was to increase the understanding of the processes and factors affecting the lateral gas migration and subsequent emission in soil adjacent to an old unlined municipal landfill. Special attention was given to determine the factors governing the migration and emission and to evaluate the importance of methane oxidation.

The Skellingsted landfill, which is situated in an abandoned gravel pit and received waste between 1971-90, was selected for an intensive field investigation. Sampling equipment was installed along two transects with the first station in the top cover of the landfill and the subsequent stations on a line perpendicular to the landfill border. Each transect consisted of 9 measuring stations, and each station consisted of a stationary flux chamber, soil gas probes to measure concentrations and pressure above barometric pressure at 6 depths and probes to measure the volumetric soil moisture content at 5 depths down to 1 m below surface (b.s.). Measuring campaigns were conducted approximately every second week from May 1997 to May 1998.

In general the concentrations of landfill gas in the soil varied showing that the lateral gas migration is a very dynamic system. There was a statistical significant seasonal variation in the methane concentrations 1 m b.s. Close to the landfill the methane concentrations were low in the summer and significantly higher in the winter. For the carbon dioxide concentrations the opposite was observed. This was caused by oxidation of methane to carbon dioxide. Further away from the landfill the concentrations of both methane and carbon dioxide were statistically significant higher in the winter compared with the summer caused by the higher soil moisture content in the topsoil in the winter. The vertical gas emission was reduced by the higher water content and thereby the lateral gas migration was increased.

There were large variations in the measured emissions during the one-year measuring period. The maximal methane flux was $189 \text{ mmol/m}^2/\text{h}$ while the average fluxes at each station were between <0.5 and $25 \text{ mmol/m}^2/\text{h}$. The maximum carbon dioxide flux was $205 \text{ mmol/m}^2/\text{h}$ and the average fluxes at each station were between 5 and $69 \text{ mmol/m}^2/\text{h}$. These fluxes are in the same range as found at the top cover at smaller older European landfill with no gas recovery. There was a significant seasonal variation in the emissions with very low fluxes of methane in the summer and higher fluxes in the winter. In general the flux of carbon dioxide was higher than the methane flux, and for carbon dioxide the seasonal variation was the opposite with high fluxes in the summer and lower fluxes in the winter. These seasonal variations were caused by the temperature dependent methane oxidation.

Pressure above the barometric pressure was measured in the soil in areas, which was affected by landfill gas during the measuring period. This indicated that advective flux was important for the gas migration. That is consistent with calculations comparing advective and diffusive flux in sandy soils, which showed that very small pressures above barometric pressures would give advective flux higher than the diffusive flux.

To evaluate the factors influencing the fluxes analyses of covariance, which can include both qualitative and quantitative variables, were conducted. In one of the transects 82% of the variations in the carbon dioxide fluxes could be described with a model including the variable “station”, which tells something about the distance from the landfill, gas concentrations, soil moisture content and pressure above barometric pressure in the upper soil layers, temperature, barometric pressure and precipitation. Soil moisture content was the factor describing the largest part of the variation in the fluxes. The statistical analysis were not conducted for the methane fluxes due to many observations below the detection limit of $0.5 \text{ mmol/m}^2/\text{h}$.

During a drop in the barometric pressure intensive measurements of the gas migration and emission was conducted for two days. These measurements showed a clear

connection between the gas concentrations in the soil, the emissions and the decreasing barometric pressure. Large changes in especially the methane concentrations were observed in the soil within very short time. The changes in both methane and carbon dioxide fluxes were also large. The concentrations and the fluxes increased as the barometric pressure decreased. At the station, 11 m from the landfill border, the flux of methane increased from below the detection limit to 196 mmol/m²/h. This shows that the lateral gas migration and subsequent emission is a very dynamic system. The methane migration is very important in relation to the explosion risk but it is difficult to make conclusions about how far away from the landfill it is possible to find methane concentrations above the lower explosion limit of 5%

At the Skellingsted landfill many indications of methane oxidation were observed: i) the CH₄/CO₂ ratio fell with distance from the landfill and up through the soil profile, ii) nitrogen concentrations above the atmospheric content was observed and iii) the soil was warmer in the areas, where methane oxidation was occurring. Methane fluxes were never measured in the summer however high carbon dioxide fluxes were found. Box-calculations were conducted to estimate the methane oxidation in the top 1 m of the soil profile. The measured fluxes and concentrations were used in the calculations, and it was assumed that no carbon dioxide was dissolved in the pore water and that no gas was produced in the soil. The calculations showed that all the methane was oxidised in the summer. On an annual basis 89% of the lateral migrating methane was oxidised. However isotope analysis of the methane at one measuring campaign showed, that the calculations overestimated the methane oxidation in the situations, where methane was detected in the flux chamber.

In the laboratory batch experiments were conducted with three soils from Skellingsted containing different organic matter content. The methane oxidation was investigated at low temperatures at different soil moisture regimes. The highest oxidation rate in the batch experiments was 1.17 µmol/m²/h at 15°C, which is high compared with the literature. Even at 2°C methane was oxidised in all soils. Calculations showed that all the methane produced at older and smaller landfills in e.g. Denmark could be oxidised. Soil moisture content was the most important factor controlling the methane oxidation in the soil from Skellingsted landfill.

The measured gas concentrations and fluxes were used as input to a numeric gas transport model. The model was used to evaluate the sensitivity of the concentrations and the fluxes to changes in: methane oxidation, diffusion, gas permeability, barometric pressure and soil moisture content. The results of the sensitivity analysis indicated that landfill gas migration in the field was most sensitive to air permeability and soil moisture content, which is consistent with the statistical analysis of the fluxes. For the concentrations in the soil moisture content was the second most important factor

followed by methane oxidation however barometric pressure had less influence. Diffusion had no influence at all, which is in agreement with calculations comparing diffusiv and advective flux.

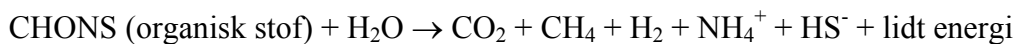
Barometric pressure had larger influence on the fluxes compared with the concentrations in the soil and was the second most important factor for the fluxes. The sensitivity was largest under large changes in barometric pressure. This indicated that changes in barometric pressure were more important than the actual barometric pressure. That was also found by the diurnal measurements during the drop in barometric pressure. The sensitivity for methane oxidation was largest in the summer, and methane oxidation had larger influence on the fluxes compared with the concentrations.

Indholdsfortegnelse

1. Introduktion	1
2. Processer og faktorer der indvirker på transporten af lossepladsgas	7
2.1. Diffusiv og advektiv flux	7
2.2. Methanoxidation	8
2.3. Atmosfæretryk	12
2.4. Temperatur	14
2.5. Vandindhold	14
3. Skellingsted losseplads	15
4. Eksperimentelt set-up	17
4.1. Transecterne	17
4.2. Gasprober	17
4.3. Fluxkamrene	18
4.4. Laboratorie batchforsøg	19
5. Gastransport i jorden	21
5.1. Gastransport ud gennem transecterne	21
5.2. Årstidsvariationer i gastransporten	23
6. Emission af lossepladsgas	27
6.1. Emissionsrater	27
6.2. Årstidsvariationer	27
6.3. Diffusiv kontra advektiv flux	30
6.4. Opløsning af gasser i nedsivende regnvand	31
6.5. Statistiske analyser på fluxene	33
7. Lavtrykspassages indvirkning på gastransporten	35
7.1. Emissioner	35
7.2. Gas i jorden	35
8. Methanoxidation	39
8.1. Laboratorie batchforsøg	39
8.1.1. Temperaturafhængigheden	39
8.1.2. Vandafhængighed	39
8.1.3. Statistik på batchforsøgene	41
8.2. Indikationer på methanoxidation in-situ	42
8.3. In-situ methanoxidationsrater	44
9. Modellering af gastransport og emission	47
9.1. Beskrivelse af modellen	47
9.2. Kalibrering	47
9.3. Følsomhedsanalyse	49
10. Konklusion	53
11. Referencer	57

1. Introduktion

Der produceres store mængder affald på verdensplan, og deponering af affald er en meget anvendt bortskaffelsesmetode. Organisk affald, som bliver deponeret på lossepladser, gennemgår en anaerob nedbrydning, der fører til dannelse af gas. Den skematiske ligning for denne anaerobe omsætning er følgende, idet forholdet mellem de dannede produkter afhænger af udgangsmaterialets sammensætning (Kjeldsen et al., 1998):



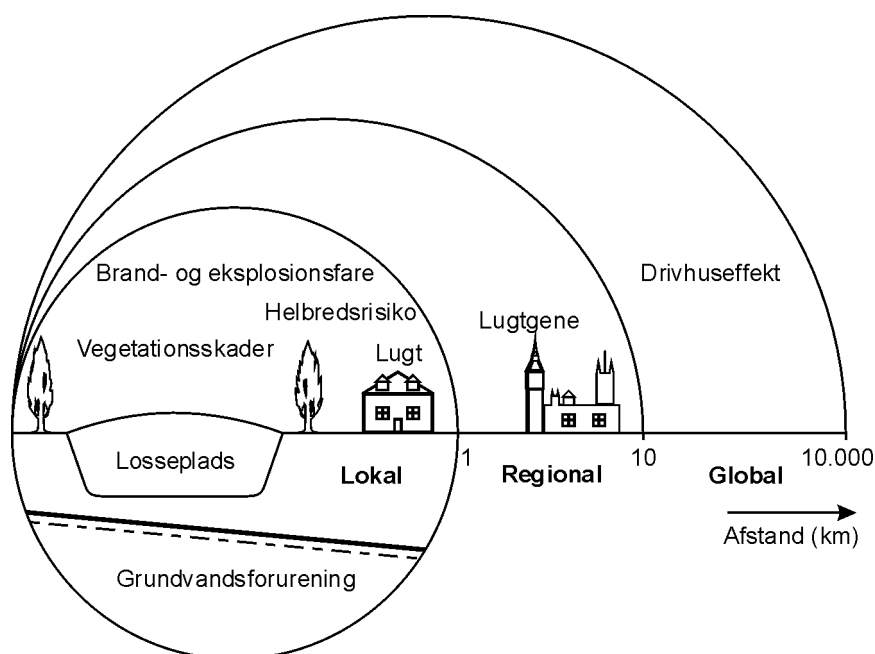
Lossepladsgas består hovedsageligt af methan og kuldioxid, men den indeholder også mindre mængder sporgasser (H_2 , NH_4^+ , HS^-) og organiske komponenter, som kan stamme både fra nedbrydningsprocesserne i lossepladsen og fra deponering af kemikalieaffald. Dannelsen af gas i lossepladser giver ofte anledning til, at der opbygges et overtryk inde i lossepladsen. Dette betyder, at transport og emission af lossepladsgas er styret af både advektiv (trykgradient) og diffusiv (koncentrationsgradient) flow i modsætning til andre tilfælde af jordforurening, hvor kun diffusion har betydning.

På verdensplan deponeres store mængder organisk affald på ukontrollerede lossepladser, hvor gassen uhindret kan transporteres ud i atmosfæren. På nogle lossepladser bliver gassen opsamlet og enten udnyttet eller afbrændt i installerede gasbrændere. Men på de fleste lossepladser bliver gas transporteret direkte fra uafdækket affald, gennem toplagsafdækningen eller gennem den omkringliggende jord og ud i atmosfæren.

Transport af lossepladsgas og emission til atmosfæren kan føre til forskellige effekter i omgivelserne – se figur 1. De mest vigtige er (Kjeldsen, 1996):

- Eksplosions- og brandfare
- Skader på vegetation
- Drivhuseffekt
- Lugt
- Helbredsrisiko
- Grundvandsforurening

Eksplodings- og brandfare. Lossepladsgas kan føre til eksplosioner pga. gassens indhold af methan. Methan er eksplosiv i koncentrationsområdet 5-15 vol% i luft. Hvis lossepladsgas bliver transporteret direkte ud i atmosfæren, er der ingen eksplosionsfare, men hvis gassen trænger ind i huse gennem f.eks. revner i funderingen, kan der opstå en eksplosiv blanding, og en gnist kan forårsage en eksplosion. I mange tilfælde er der fundet forhøjet koncentration af methan i huse. Gendebien et al. (1992) beskriver 55 tilfælde, hvor methan fra lossepladser var involveret i eksplosioner og brande. I Loscoe, UK skete der i 1986 en gasekspllosion, som fuldstændig ødelagde et hus (Williams & Aitkenhead, 1991). Eksplosionen skete under et kraftigt trykfald, som gav et forøget advektivt flow af lossepladsgas. Gas fra den nærliggende losseplads strømmede i lag med opsprækket sandsten og kul. Ved Skellingsted losseplads på Sjælland skete der i marts 1991 en gasekspllosion, som vil blive beskrevet nærmere i kapitel 3.



Figur 1. Effekter af lossepladsgas i forskellige skala (efter Kjeldsen, 1996).

Vegetationsskader. I mange tilfælde er der observeret skader på vegetationen nær lossepladser. Det skyldes hovedsageligt, at gassen fortrænger ilt fra rodzonen, eller at ilten bliver brugt ved methanoxidation, hvorved planterne kvæles. Vegetationsskaderne kan dog også skyldes gassens indhold af kuldioxid, som er fytotoksisk ved koncentrationer over 20 vol% (Gendebien et al., 1992).

Drivhuseffekt. Drivhuseffekten skyldes gassernes udslip til atmosfæren, hvor de ved stigende koncentration reflekterer en stigende del af den infrarøde stråling fra jorden, og derved bidrager til den globale opvarmning. Over en 100 års periode har methan et 21 gange højere potentiale for opvarmning sammenlignet med kuldioxid, som er den mest

betydningsfulde drivhusgas. Methan har gennem de sidste 150 år bidraget med ca. 22% til den globale opvarmning sammenlignet med de andre drivhusgasser (Lelieveld et al., 1998). Methanindholdet i atmosfæren er forøget med en faktor 2 i det sidste århundrede. Indtil tendensen for nylig aftog var stigningen i atmosfærens methanindhold på ca. 1% pr. år (Lelieveld et al., 1998).

Den totale årlige emission af methan fra alle kilder er 600 Tg ($T=10^{12}$). Den største naturlige kilde er vådområder (145 Tg), mens fossil brændsel (110 Tg), drøvtygning (85 Tg), rismarker (80 Tg), afbrænding af biomasse (40 Tg) og lossepladser (40 Tg) bliver betragtet som de vigtigste antropogene kilder (Lelieveld et al., 1998). Lossepladsers bidrag til den globale methanemission er baseret på estimer af methanproduktionen ud fra nationale statistikker for deponerede affaldsmængder. Europa og Nord Amerika er ansvarlige for ca. halvdelen af methanemissionen fra lossepladser.

Sammenlignet med andre terrestiske methanproducerende kilder (vådområder, rismarker) er lossepladser mere lukkede systemer pga. den kontrollerede nedbrydning af organisk materiale. Lossepladser kan konstrueres til at opsamle perkolat og gas, så sammenlignet med andre terrestiske methanproducerende kilder er der for lossepladser mulighed for at nedsætte methanemissionen vha. både konstruerede og naturlige kontrolmekanismer.

Lugtgener. Både methan og kuldioxid er lugtfrie gasser. I begyndelsen af den anaerobe nedbrydning af organisk materiale (under syrefermentationen) dannes der mercaptaner og flygtige syrer, som sammen med hydrogensulfid og organiske svovlforbindelser kan give anledning til store lugtgener. Nogle af disse komponenter skal fortyndes 1 million gange, for at bringe dem ned under lugtgrænsen (Young & Parker, 1983).

Helbredsrisiko. Kuldioxid kan påvirke åndedrætscentret i centralnervesystemet og kan forårsage utilpashed selv ved lave koncentrationer. Grænseværdien for kuldioxid er 0,5 vol% (Carbondioxid, 1995), så generelt skal der en 10 gange større fortynding til at bringe kuldioxidindholdet ned under grænseværdien, end der skal til for at bringe methanindholdet ned under den nedre eksplosionsgrænse under antagelse af, at lossepladsgas indeholder lige store mængder methan og kuldioxid. Nogle af de organiske sporkomponenter i lossepladsgas kan også give helbredsmæssige problemer f.eks. vinylklorid og benzen, som er carcinogene.

Grundvandsforurening. Lossepladsgas, som bevæger sig ud i den omkringliggende jord, er eksponeret for nedsivende regnvand. Derved kan nogle af gassens komponenter blive opløst og efterfølgende forurene grundvandet. Mange af de organiske sporkomponenter (f.eks. benzen, klorbenzen, toluen, diklorethen, methylenklorid, triklorethylen (Kerfoot, 1996)) har en høj opløselighed og kan derved udgøre en risiko for grundvandet.

Som det fremgår af ovenstående, er det vigtigt at have styr på spredningen af lossepladsgas. Der eksisterer to væsentlige metoder til at håndtere lossepladsgas. Den ene metode er gasindvinding med efterfølgende udnyttelse af gassen. Denne metode er generelt at betragte som den mest fordelagtige, da den resulterer i energi, som kan udnyttes. Den alternative metode er optimering af methanoxidation i lossepladsens toplag. Dette er en meget billigere og mere effektiv metode til at reducere methanemissionen fra mindre og ældre lossepladser med lav gasproduktion sammenlignet med gasindvinding, som ikke er særlig effektiv ved lave gasproduktioner.

Igennem tiden er der udført mange undersøgelser af gasemissionen gennem toplaget på lossepladser, men der er ingen, der har set på gasemission fra de omkringliggende arealer. Bogner et al. (1997a) har samlet nogle af de nyere europæiske og nordamerikanske undersøgelser af methanemission fra lossepladser i en tabel, og den viser, at methanemissionen varierer over syv størrelsesordner fra $<0,0004$ - $4.000 \text{ g/m}^2/\text{d}$ ($<0,001$ - $10.400 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$). Dette store interval skyldes de store variationer i gasproduktion, pladsernes opbygning (membraner, genindvinding) og methanoxiderationsrater. Målinger af gasemission fra mindre afsluttede lossepladser uden gasindvinding er samlet i tabel 1. Det ses, at for disse lossepladser er variationerne i fluxe noget mindre.

Tabel 1. Emission af methan og kuldioxid fra mindre, europæiske afsluttede lossepladser uden gasindvinding.

Sted	CH ₄ (mmol/m ² /h)		CO ₂ (mmol/m ² /h)		Reference
	Gens.	Max.	Gens.	Max.	
Hökhuvud, Sverige	0,034-20		0-35		Börjesson & Svensson, 1997
UK, flere pladser	2,14	13,5			Meadows et al., 1999
Martin Farm, UK	57-104				Jones & Nedwell, 1993
Luleå, Sverige	0-5,25	13,9	1,26-102	248	Maurice & Lagerkvist, 1997
Schoten, Belgien	0,02-2,4				Boeckx et al., 1996

I Danmark er mange gamle lossepladser placeret i nedlagte grusgrave, hvor der er en direkte kontakt mellem affaldet og de omkringliggende jordlag. I forbindelse med deponering er affaldet ofte blevet kompakteret, og der er blevet brugt lavpermeable lag (f.eks. lerholdigt jord) som daglig afdækning. Dermed kan der dannes horisontale barrierer inde i affaldet. For at nedsætte perkolatdannelsen er lossepladser i mange tilfælde blevet slutafdækket med topmembraner. Alle disse omstændigheder er med til at fremme den laterale transport af lossepladsgas – specielt ved lossepladser uden membraner.

I mange tilfælde er der blevet målt forhøjede koncentrationer af methan i jord nær lossepladser (Raybould & Anderson, 1987; Hodgson et al., 1992; Williams & Aitkenhead,

1991; Kjeldsen & Fischer, 1995; Boltze & de Freitas, 1997). Ward et al. (1996) undersøgte den laterale spredning af lossepladsgas fra Foxhall Landfill, UK. De afgrænsede gasfanen, men de undersøgte ikke hvilke faktorer, der påvirkede gastransporten.

Denne ph.d. afhandling har til formål at forøge forståelsen af de processer og faktorer, der har indvirkning på den laterale transport og efterfølgende emission af lossepladsgas fra gamle lossepladser uden membraner, med specielt henblik på at kortlægge de mest betydende faktorer. Den forholdsmæssige betydning af diffusiv og advektiv transport er kortlagt sammen med betydning af forskellige meteorologiske faktorer (atmosfæretryk, nedbør, temperatur) og de sæsonmæssige variationer af disse. Betydningen af methanoxida-tions indvirkning på lossepladsgasemission er gennemgået, og det er undersøgt, hvordan oxidationen påvirkes af faktorer som temperatur og vandindhold. Kemiske forhold som opløsning af gas i vand er inddraget. De opnåede resultater kan danne grundlag for mere sikre risikovurderinger af eksplosionsfaren, samt for bedre estimat af emissionerne fra lossepladser, hvor også methanoxidationens betydning er inddraget.

Projektets formål er blevet opfyldt ved udførsel af langtids feltforsøg ved en losseplads, hvor de sæsonmæssige variationer i gastransporten i jord og efterfølgende emissioner er blevet målt sammen med en række af de faktorer, der har indflydelse på transport og emission (Christophersen & Kjeldsen, 2001, II; Christophersen et al., 2001, III). I laboratoriet er der udført batchforsøg til kortlægning af forskellige faktoreres indvirkning på methanoxidationen (Christophersen et al., 2000, I). Resultaterne fra felt- og laboratorieforsøg er blevet brugt som input til en numerisk gastransportmodel, der er kalibreret ud fra de målte gaskoncentrationer og verificeret ud fra yderligere gaskoncentrationer og fluxmålinger. Gastransportens relative følsomhed overfor jord og meteorologiske forhold er evalueret vha. modellen (Poulsen et al., 2001, IV).

2. Processer og faktorer der indvirker på transporten af lossepladsgas

Der er mange forskellige processer og faktorer, der indvirker på transporten af lossepladsgas - se figur 2. Processerne kan inddeles i (Kjeldsen, 1996):

- Diffusion
- Advektion
- Fortynding
- Opløsning af lossepladsgas i vand
- Sorption til jord
- Nedbrydning (methanoxidation)

De tre grupper af faktorer er (Kjeldsen, 1996):

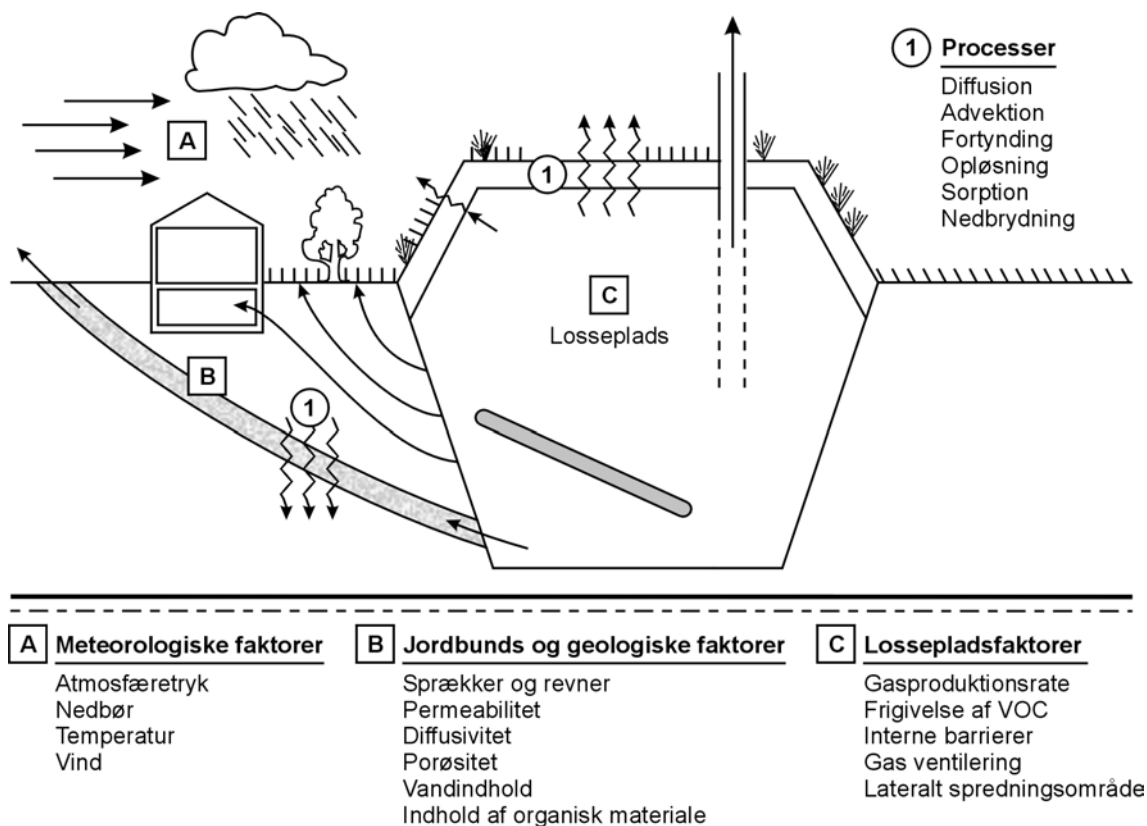
- Meteorologiske faktorer (atmosfæretryk, nedbør, temperatur)
- Jordbunds- og geologiske faktorer (revner, permeabilitet, diffusivitet, porøsitet, vandindhold, indhold af organisk materiale)
- Lossepladsfaktorer (gasproduktionsrate, interne barrierer, gas ventilering, lateralt spredningsområde)

I Kjeldsen (1996) er der givet en grundig gennemgang af alle processer og faktorer samt teorien bag. I det følgende vil de vigtigste processer og faktorer blive gennemgået specielt med henblik på, hvad andre undersøgelser har vist.

2.1. Diffusiv og advektiv flux

Diffusiv flux skyldes en koncentrationsforskel og kan beskrives ved Ficks lov. Diffusiv flux vil altid forekomme i forbindelse med spredning af lossepladsgas, da der vil være forskel i koncentrationerne af methan og kuldioxid i lossepladsgas og i den omkringværende luft. Advektiv flux forårsages af en trykgradient og kan i porøst materiale beskrives ved Darcys lov. Som følge af gasproduktionen inde i lossepladsen kan der opstå et overtryk i forhold til atmosfæren, som vil give anledning til advektiv flux. Ændringer i

atmosfæretrykket medfører ændringer i trykgradienten, og dermed får atmosfæretrykket stor betydning for den advektive flux.

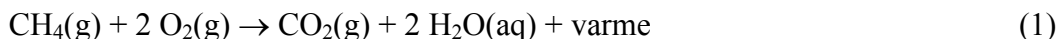


Figur 2. Skitse af lossepladsgas spredning. Processer og faktorer, som har indvirkning på spredning af gassen er vist (efter Kjeldsen, 1996).

Mange undersøgelser af transporten af lossepladsgas har vist, at både advektiv og diffusiv transport er vigtige processer (Ghabaee & Rodwell, 1989; Williams & Aitkenhead, 1991; Hodgson et al., 1992; Williams et al., 1999). I Kjeldsen (1996) er der en sammenfatning af matematiske modeller, der beskriver gastransport. I langt de fleste tilfælde er både diffusion og advektion inkluderet. Williams et al. (1999) modellerede på gasfane fra Foxhall Landfill, og de viste, at både diffusion og advektion skulle inddrages for at beskrive udbredelsen af fanen. Beregninger har også vist, at advektivt flow var medvirkende, da der skete en gasekspllosion i Loscoe (Williams & Aitkenhead, 1991)

2.2. Methanoxidation

Lossepladsgas bliver transporteret gennem tolaget af lossepladser eller ud i den omkringliggende jord, inden den bliver emitteret til atmosfæren. Under denne transport kan gassen blive blandet med atmosfærisk luft, og derved kan methan blive oxideret til kuldioxid af methanotrofe bakterier i jorden:



Methanoxidation bliver kontrolleret af forskellige faktorer (temperatur, vandindhold, næringsstoffer, methan og iltindhold, (Hanson & Hanson, 1996)). Derfor er de klimatiske forhold af stor betydning for den aktuelle methanoxidation. Jord, som er blevet eksponeret for høje koncentrationer af methan, kan udvikle en stor kapacitet for methanoxidation, og oxidation af methan er i mange tilfælde blevet observeret i toplaget af lossepladser (Whalen et al. 1990; Bogner et al., 1995; Kightley et al., 1995; Boeckx et al., 1996; Czepiel et al. 1996a; Bogner et al., 1997b; Börjesson & Svensson, 1997).

Der er lavet mange undersøgelser af methanoxidation – specielt i laboratoriet, men også i felten. To faktorer, som har vist sig at være meget vigtige for methanoxidation er temperatur og vandindhold. Tabel 2 viser udvalgte data fra litteraturen, hvor effekten af temperatur og vandindhold på methanoxidation i lossepladstopjorde er undersøgt i laboratoriet ved høje start methankoncentrationer. Den optimale temperatur for methan oxidation er fundet til 25-35°C og det optimale vandindhold til 10-20%. Det ses af tabellen, at den laveste undersøgte temperatur er 5°C (Whalen et al., 1990; Czepiel et al., 1996a). I Nordeuropa er der mange gamle lossepladser med lav gasproduktion, hvor optimering af methanoxidation i toplaget er den eneste reelle mulighed for at nedsætte methanemissionen. Men der er ikke udført undersøgelser af lave temperatures indvirkning på methanoxidation i jorde, som er eksponeret for høje koncentrationer af methan.

I andre jorde sker der også oxidation af atmosfærens indhold af methan (som er ca. 1,7 ppm). King & Adamsen (1992) undersøgte intakte jordsøjler fra skovjord, hvor temperaturen blev hævet trinvist fra 0 til 30°C. Det gav en stigning på 35% i oxidationsraterne. Den lave temperaturfølsomhed ($Q_{10} = 1,1$) blev forklaret ved, at methanoxidationen var dybdespecifik, og at det var diffusion, der styrede transporten af methan. Q_{10} er et udtryk for, hvor mange gange methanoxidationen vokser, når temperaturen øges med 10°C ved temperaturer under den optimale. King & Adamsen (1992) observerede methanoxidation ved -1°C og mente, at oxidationen vil foregå så længe vandet er flydende. Dunfield et al. (1993) fandt ligeledes en lav temperaturfølsomhed i batchforsøg med tørv ($Q_{10} = 1,4-2,1$). I området 0-10°C var oxidationsraten 13-38% af den maksimale rate. Priemé & Christensen (1997) undersøgte methanoxidation ved lave temperaturer og fandt methanoxidation helt ned til 1°C i felten og -2°C i laboratoriet. Mange undersøgelser har vist, at det er forskellige typer af methanotrofe bakterier, der udfører oxidationen ved høje og lave koncentrationer af methan (Bender & Conrad, 1992; Kightley et al., 1995; Bogner et al., 1997b). Derfor kan man ikke overføre resultaterne fra naturlige jorde, som er eksponeret for lave koncentrationer af methan, til lossepladsers toplagsjorde, hvor høje koncentrationer af methan vil forekomme.

Tabel 2. Maksimale methanoxiderationsrater, optimale temperaturer og vandindhold i slutfædækninger på lossepladser: udvalgte data fra litteraturen. Laboratorie batchforsøg ved høje start methankoncentrationer med mindre andet er angivet.

Jordtype	Indhold af org. mat. (vægt %)	Undersøgt interval (temp)	Optimum temperatur	Q ₁₀	Undersøgt interval (vand)	Optimum vandindhold	Max. oxidationsrate ($\mu\text{mol/g/h}$)	Reference
Humus jord	7,2 ^(†)	20°C			0-120 % ^(‡)	40-70 % ^(‡)	5,4	Figueroa, 1993
Dyrket jord	4,4 ^(†)	10-40°C	30°C		0-120 % ^(‡)	60 % ^(‡)	2,5	Figueroa, 1993
Kompost	31,6 ^(†)	20°C			0-120 % ^(‡)	40-80 % ^(‡)	8,0	Figueroa, 1993
Sand blandet med ler	4	5-46°C	31°C	1,9 (5-26°C)	5-71%	11%	0,17	Whalen et al., 1990
Sandet leret jord	1,8	12-35°C	25-30°C		5-35%	15%	0,00015 ^(§)	Boeckx & Van Cleemput, 1996
Sandet leret jord	1,8	5-45°C	36°C	2,4 (20-30°C)	0-40%	16%	2,6	Czepiel et al., 1996a
Sandet leret jord	1,2 ^(†)	5-30°C	20-30°C	1,88 (10-20°C)	5-30%	16-19%	0,00068 ^(§)	Boeckx et al., 1996
Sandet leret jord	0,7-4,1	25°C			10-60%	<10%	1,0	Börjesson & Svensson, 1997

(†): Omregnet vha. ligningen: % org. mat. = 2 • % org. C (Nelson & Sommers, 1982)

(‡): Procent af den maksimale feltpacitet

(§): Forsøg udført med en start methankoncentration på 10 ppm

Mange undersøgelser har vist, at methanoxidationen er meget afhængig af jordens vandindhold, og at der er et optimalt vandindhold – se tabel 2. Der er to faktorer, som er ansvarlige for dette optimum: jord/vand gastransport og mikrobiel vandmangel. Den faldende oxidationskapacitet ved vandindhold højere end det optimale kan forklares med en reduceret gasdiffusion af methan og ilt mellem jord og gasfase (Whalen et al., 1990; Adamsen & King, 1993; Koschorreck & Conrad, 1993; Schnell & King, 1994; Boeckx & Van Cleemput, 1996). Den molekylære gasdiffusion er ca. 10^4 gange højere end den molekylære vanddiffusion. Ved vandindhold lavere end det optimale sker der en udtørring, som nedsætter den mikrobielle aktivitet (Adamsen & King, 1993; Boeckx & Van Cleemput, 1996).

Ved feltforsøg er det sværere at kvantificere methanoxidationen, men der kan være en del indikatorer på, at der sker methanoxidation:

- Et klart tegn er højere koncentration af kuldioxid end af methan. I ren lossepladsgas er der normalt ca. 55% methan og ca. 45% kuldioxid. Når metanen bliver oxideret til kuldioxid sker der en ændring i CH_4/CO_2 -forholdet, som bliver mindre, jo mere methan der bliver oxideret.
- Oxidationen er exoterm (udvikler varme), og i flere tilfælde er der observeret forhøjede jordtemperaturer i områder, hvor der sker methanoxidation (Williams & Aitkenhead, 1991; Humer & Lechner, 1999)
- Som det ses af ligning 1, sker der en volumenreduktion under oxidationen, idet 3 mol gas bliver til 1 mol gas, og dette trykfald bliver der kompenseret for ved advektiv flow af atmosfærisk luft fra den ene side og lossepladsgas fra den anden. Dette kan føre til en forhøjet nitrogenkoncentration i områder, hvor der sker methanoxidation (Bergman et al., 1993; Kjeldsen, 1996; Humer & Lechner, 1999)
- En anden indikation på methanoxidation opnås ved analyse af stabile kulstof isotoper ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$) i methan og kuldioxid. De methanotrofe bakterier i jorden foretrækker at omsætte de lette ^{12}C , og derved bliver den resterende methan tungere. Dette blev observeret ved Foxhall Landfill, hvor $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ -forholdet i methan steg og $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ -forholdet i kuldioxid faldt med voksende afstanden til lossepladsen (Ward et al., 1996).

Mange har undersøgt methanoxidations indflydelse på emissionen af methan gennem toplag på lossepladser (Bergman et al., 1993; Jones & Nedwell, 1993; Nozhevnikova et al., 1993; Czepiel et al., 1996a; Bogner et al., 1997b; Börjesson & Svensson, 1997), men kun få har set på methanoxidations indflydelse på den laterale gastransport. Kjeldsen & Fischer (1995) studerede den laterale gastransport ved Skellingsted losseplads, og

de fandt, at CH_4/CO_2 -forholdet faldt med afstanden til lossepladsen som indikation på methanoxidation. Det samme blev fundet af Ward et al. (1996) ved Foxhall Landfill.

Maurice & Lagerkvist (1997) undersøgte emissionen af lossepladsgas fra en mindre losseplads i Nordsverige. De fandt, at for store dele af året var methanoxidationen fuldstændig, idet der ikke blev emitteret noget methan, men store mængder kuldioxid. Det samme blev fundet ved mindre losseplader i USSR (Nozhevnikova et al., 1993). Ved hjælp af en methanoxidationsmodel, som bruger resultater fra inkubationsforsøg i laboratoriet og feltmålinger af methanemission, har Czepiel et al. (1996a) regnet sig frem en årlig methanoxidation på 10% for en større amerikansk losseplads (60 ha) uden gasindvinding. Liptay et al. (1998) brugte isotopanalyser til at kvantificere methanoxidationen. De sammenlignede isotopsammensætning af den rene lossepladsgas og af den emitterede gas, og beregnede sig frem til at 24-35% af metanen blev oxideret om sommeren ved seks lossepladser i New England, USA. Chanton et al. (1999) målte den sæsonmæssige variation i methanoxidation vha. isotopanalyser på gasfanen ved to Nordøst-amerikanske lossepladser. De største methanoxidationer blev målt om sommeren og efteråret, og den årlige methanoxidation blev estimeret til 12%. Chanton & Liptay (2000) estimerede den årlige methanoxidation til 26% for områder af lossepladsen, som havde et muldet toplag, og 14% for områder, som havde et leret toplag, ved at bruge isotopanalyser til at kvantificere methanoxidationen i toplaget på en losseplads i Florida.

2.3. Atmosfæretryk

Atmosfæretrykket influerer på emissionen af methan. Det er i flere tilfælde blevet brugt som nøgleparameter i gasflow modeller (Lu & Kunz, 1981; Young, 1990; 1992). Et fald i atmosfæretrykket vil føre til en forøget trykgradient mellem lossepladsen og atmosfæren, og derved vil gas blive suget ud af lossepladsen, mens en øgning i atmosfæretrykket vil have den modsatte virkning.

Gasekspllosionen ved Loscoe skete under passage af et kraftigt lavtryk (-4 mbar/h), hvilket har været medvirkende til at give en forøget advektiv gastransport (Williams & Aitkenhead, 1991). Det samme var tilfældet ved gasekspllosionen i Skellingsted (se kapitel 3), men her var trykfaldet dog ikke så kraftigt (-0,6 mbar/h, Kjeldsen & Fischer, 1995).

Czepiel et al. (1996b) målte den samlede methanemission fra Nashua Landfill i New Hampshire, USA vha. en atmosfærisk sporgasmetode. Methanemissionen blev målt fem gange, og der blev fundet en signifikant invers lineær korrelation mellem methanemissionen og det atmosfæriske tryk. Bogner et al. (1987) udførte kontinuerlige målinger af tryk og koncentrationer i toplaget på Mallard North Landfill i Illinois, USA. Ændringer

i atmosfæretrykket kunne aflæses på samtlige trykmålinger i jorden. I perioder med varmt og tørt vejr indstillede der sig hurtigt en ligevægt mellem trykket i jorden og atmosfæretrykket, hvilket indikerer, at diffusion var den styrende transportmekanisme. I perioder med koldt og vådt vejr var der konstant et forhøjet tryk i jorden, hvilket indikerer, at der var en positiv trykgradient fra jorden og ud til atmosfæren, og at advektiv flow var styrende.

Ved Skellingsted losseplads målte Kjeldsen & Fischer (1995) variationerne i gassammensætningen som en funktion af tiden og afstanden til lossepladsen. I de gasprober, der stod tæt på lossepladsen (10 m), var der ingen effekt af ændringer i det atmosfæriske tryk. Koncentrationerne af lossepladsgas var konstant høje. Lidt længere væk fra lossepladsen (60 m), var der en sammenhæng mellem atmosfæretrykket og koncentrationerne: høje methankoncentrationer blev observeret ved faldende tryk og vice versa. Endnu længere væk fra lossepladsen (120 m) blev der ikke observeret forhøjede koncentration af methan på noget tidspunkt. Kjeldsen & Fischer (1995) målt også gaskoncentrationerne i jord under en lavtrykspassage (-0,4 mbar/h). I 80 cm's dybde steg methankoncentrationen fra under 1% til næsten 40% på 33 timer. Dybere nede (2,5 m under terræn) var ændringerne i koncentrationerne ikke så store. Dette er i overensstemmelse med Ward et al. (1996), som fandt meget variable koncentrationer over tiden ned til 2 m under terræn og derunder mere stabile koncentrationer.

Young (1990) udviklede en kvantitativ model, som relaterede de volumetriske ændringer i lossepladsgasemission til ændringer i det atmosfæriske tryk. Resultaterne fra computersimulationerne indikerede, at størrelsen af emissionen var proportional med hastigheden, hvormed ændringerne i det atmosfæriske tryk skete, i højere grad end med det aktuelle atmosfæretryk. Når atmosfæretrykket var konstant, var emissionen også konstant og uafhængig af atmosfæretrykket. I Young (1992) er modellen udvidet til at se på variationerne i de enkelte komponenter i gassen som følge af ændringer i atmosfæretrykket. Konklusionen var den samme (emissionen afhang af ændringer i atmosfæretrykket), men udsvingene i kuldioxidkoncentrationen var meget mindre end udsvingene i methankoncentrationen. Dette skyldes, at kuldioxid er mere opløselig i vand end methan, og at porevandet virker som en buffer for kuldioxidkoncentrationen. Generelt konkluderede Young (1992) at, 1) lossepladsgassammensætninger kan variere meget selvom gasproduktionen er konstant, 2) jo større vandindhold i lossepladsen og jo højere pH i perkolatet jo større ændringer i gassammensætning og 3) jo lavere gasproduktion jo større ændringer i gassammensætningen.

Straka et al. (1997) fandt en pæn korrelation mellem ændringen i det atmosfæriske tryk og methanemissionen i toplaget på en losseplads: jo mere negativ trykgradient jo større emissioner.

2.4. Temperatur

Temperaturen kan indvirke på transporten og emissionen af lossepladsgas, idet gasser-nes diffusionskoefficient er afhængig af temperaturen. Jo højere temperatur jo højere koefficient (Kjeldsen, 1996). Temperaturen har også stor indflydelse på methanoxidation som nævnt i afsnit 2.2. Dette er forklaringen på, at flere har fundet en sæsonvariation i methanfluxen med lave eller slet ingen fluxe om sommeren og højere fluxe om vinteren (Börjesson & Svensson, 1997; Maurice & Lagerkvist, 1997).

Börjesson & Svensson (1997) undersøgte sæsonvariationen i methanemission gennem toplotet ved en mindre svensk losseplads og fandt, at jordtemperaturen var den bestemmende parameter. Der var en negativ korrelation mellem jordtemperatur og methanemission, hvilket indikerer, at methanoxidation var en vigtig faktor.

2.5. Vandindhold

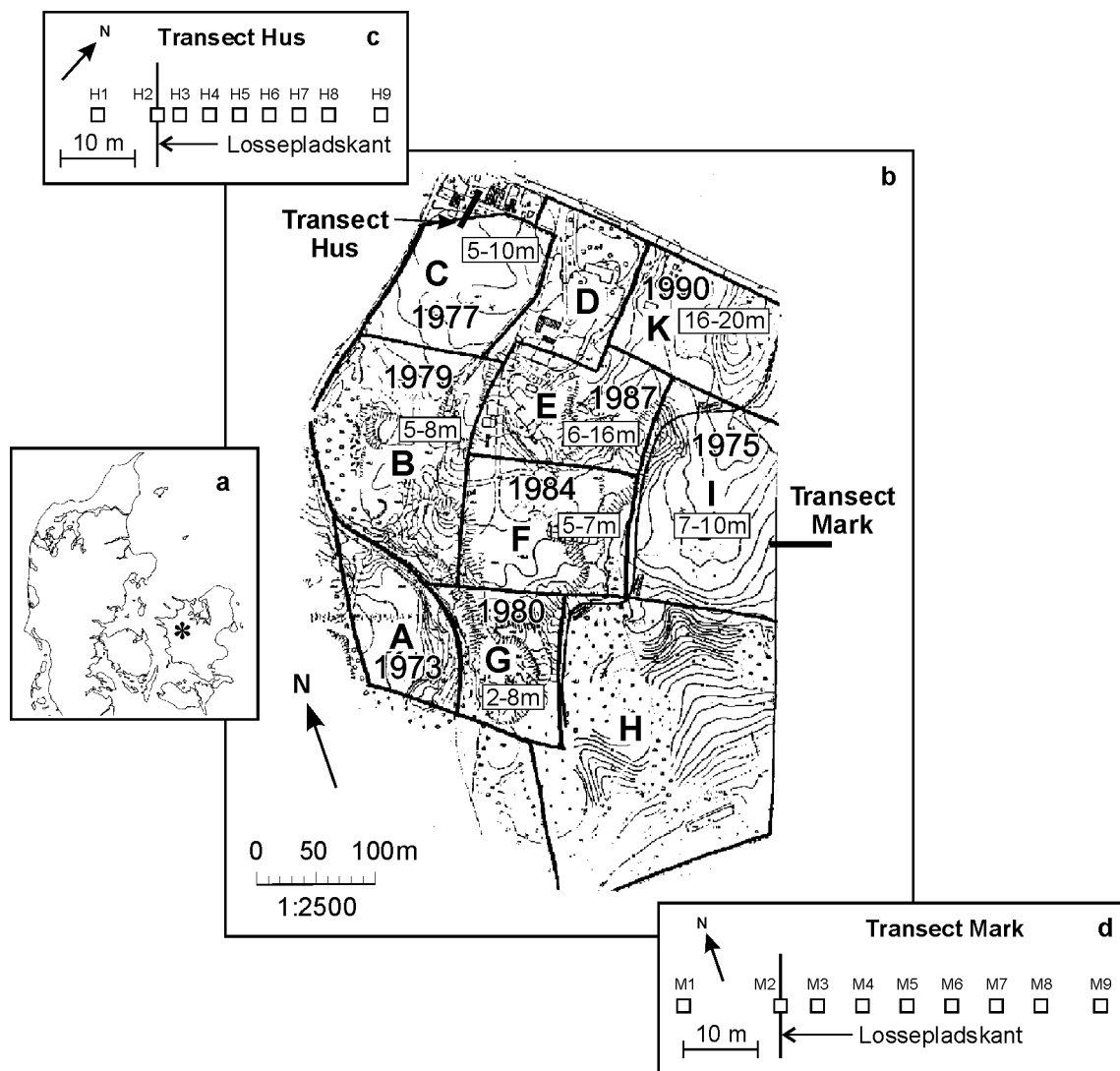
Jordens vandindhold influerer både på gaspermeabiliteten og diffusiviteten af jorden. Generelt er jordens vandindhold i de øverste lag højere om vinteren end om sommeren pga. større mængde nedbør og lavere evapotranspiration. Dette medfører, at den vertikale gaspermeabilitet og diffusiviteten af de øverste jordlag er væsentlig lavere om vinteren. På kort sigt kan store mængder nedbør totalt blokere for den vertikale gastransport.

Bogner (1992) fandt, at ændringer i vandindholdet havde stor indflydelse på gaskoncentrationerne i jorden. Ved en losseplads i Illinois, USA faldt der efter en meget varm sommer 25 cm regn på to måneder. Gennem den periode steg methankoncentrationen i jorden, mens iltkoncentrationen faldt, idet den gasfyldte porøsitet blev reduceret pga. det stigende vandindhold, som effektivt forseglede de øverste jordlag.

Jones & Nedwell (1993) observerede også en sæsonvariation i methanemissionen ved en losseplads i England. Der blev fundet højere methanemissioner om sommeren, og dette blev forklaret ved det lavere vandindhold i jorden om sommeren. Bogner et al. (1999) målte den tidlige variation i methan- og kuldioxidemissionerne ved en losseplads i Illinois, USA med gasindvinding. Generelt var de målte fluxe meget lave, og der blev aldrig målt positiv methanflux. Der blev udført multiple lineære regressionsanalyser. For den negative methanflux (oxidation af atmosfærens indhold af methan) havde vandindhold, jordtemperatur og startkoncentrationen af methan i fluxkammeret signifikant indflydelse. For kuldioxidflux havde vandindhold, jordtemperatur og koncentrationen af methan og kuldioxid i forskellige dybder signifikant indflydelse.

3. Skellingsted losseplads

I 1991 skete der en gasekspllosion ved Skellingsted losseplads, og det førte til mange undersøgelser af lossepladsgas ved Skellingsted losseplads og ved mange andre lossepladser i Danmark. Forsøgene i dette ph.d. projekt er udført ved Skellingsted losseplads, som i det følgende vil blive kort beskrevet. Skellingsted losseplads ligger syd for Holbæk på Vestsjælland i Danmark. Det er en ukontrolleret losseplads uden nogen form for membraner. Lossepladsen har fungeret som fælleskommunalt anlæg for 4 kommuner.



Figur 3. (a) Den geografiske placering af Skellingsted losseplads i Danmark. (b) Kort over de forskellige etaper på lossepladsen. Afslutningsåret og estimeret fyldhøjde er givet for hver etape. (c) Detaljeret kort over målestationerne i transect Hus. (d) Detaljeret kort over målestationerne i transect Mark. I begge transecter består målestationerne af et fluxkammer, 6 gasprober og 5 par prober til måling af vandindholdet.

Den har modtaget affald mellem 1971 og 1990, og totalt er der deponeret 420.000 tons affald på den 7,5 hektar store losseplads (Energistyrelsen, 1998). Affaldets sammensætning er ca. 60% husholdningsaffald og 40% storskrald, industriaffald og slam fra spildevandsrensning (Kjeldsen & Fischer, 1995).

Lossepladsen er placeret i en gammel grusgrav i en smeltevandskegle, hvor de aflejrede materialer hovedsageligt er smeltevandssand og -grus med enkelte tynde bånd af silt. Lossepladsen er inddelt i 10 forskellige etaper, og på figur 3 ses afslutningsår og estimeret fyldhøjde for de enkelte etaper. Etape D indeholder ikke noget affald. Den har fungeret som indkørsel til lossepladsen. Etape H er et meget skrånende stykke af grunden, som ikke har været benyttet til deponering. Slutafdækningen består af ca. 80 cm sand og 20 cm muld, og lossepladsen er blevet beplantet med græs, træer og buske.

Tidligt om morgenen d. 21. marts 1991 skete der en eksplosion et hus, som lå på etape D. Eksplosionen kostede husets to beboere livet. Huset var omgivet af affald på tre sider, og der var kun 30 m ud til etape E. Husets gulvkonstruktion bestod af stampet ler og gulvbrædder, hvilket ikke yder særlig stor modstand mod gasindtrængning. Herudover blev der et halvt år før ulykken udlagt et nyt sivedræn til huset mellem huset og lossepladsen. De meteorologiske forhold umiddelbart op til ulykken har været afgørende. Døgnet før ulykken var atmosfæretrykket faldende, og der faldt store mængder regn. Atmosfæretrykfaldet har givet en øget trykgradient mellem poreluften i lossepladsen og atmosfæren og dermed en forøget advektiv flux. Yderligere har regnen lukket luftporerne i den øverste zone af jorden og dermed givet anledning til en forøget lateral transport af gassen. Alle disse ufavorable omstændigheder førte til, at methankoncentrationen inde i huset nåede op over 5 vol%, således at eksplosionen kunne ske (Kjeldsen & Fischer, 1995).

4. Eksperimentelt set-up

Nedenstående er givet en kort gennemgang af forsøgene, som ligger til grund for denne ph.d. afhandling. En udførlig beskrivelse af forsøgene, materialerne og metoderne er givet i Christophersen et al. (2000, I), Christophersen & Kjeldsen (2001, II) og Christophersen et al. (2001, III).

4.1. Transecterne

Ved Skellingsted losseplads blev der installeret to transecter af målestationer til måling af den laterale gasspredning og efterfølgende emission. Transecterne startede oppe på lossepladsen og fortsatte vinkelret på lossepladskanten ud i den omkringliggende jord – se figur 3. Det ene transect (transect Hus) lå ved etape C lidt vest for et hus, der endnu står ved lossepladsen. Det andet (transect Mark) lå ved etape I og ud på en mark, hvor der er vegetationsskader som følge af gasemission. Hver transect bestod af ni målestationer, hvor den første stod oppe på selve lossepladsen og den næste på kanten af affaldet (i det følgende benævnt som kanten af lossepladsen). Derefter stod stationerne jævnt spredt ud gennem transectet. I transect Hus hed stationen oppe på lossepladsen H1, på kanten af lossepladsen H2 osv. I transect Mark hed stationerne M1, M2 osv.

Ud fra nogle indledende forsøg blev det vurderet, hvor langt væk fra lossepladsen det var nødvendigt at måle for at kortlægge gasfanen. Herudfra blev den yderste målestation placeret. For transectet ved huset lå den sidste målestation 30 m fra kanten af lossepladsen, og på marken var der 43 m fra sidste målestation og ind til kanten af lossepladsen. Hver målestation bestod af et fluxkammer, gasprober og prober til måling af vandindhold. Der blev udført målerunder med ca. 14 dages mellemrum over et år fra maj 97 til maj 98. Ved hver målerunde blev der i udvalgte stationer målt methan- og kuldioxidflux; methan-, kuldioxid-, ilt- og nitrogenkoncentrationer i gasproberne; luft- og jordtemperatur; vandindhold over dybden og trykforskel i gasproberne. Fra DMI blev der skaffet data om nedbør, atmosfæretryk og døgnmiddeltemperaturer fra nærliggende målestationer.

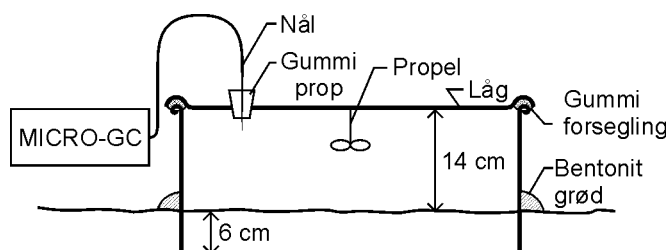
4.2. Gasprober

Gasproberne var små stålrør (ID=7 mm) med forskellig længde, som var lukket i enden og slidset forneden. Der var gasprober til måling af gaskoncentrationer 10, 20, 40, 60, 80 og 100 cm under terræn (u.t.). Gasproberne blev tømt for dødvolumen, inden der blev udtaget en gasprøve til analyse. Gasprøverne blev opbevaret i Venoject-glas, indtil de blev analyseret på en bærbar gaschromatograf (Chrompack Micro-GC). Der blev endvidere målt trykforskel i gasproberne.

Det volumetriske vandindhold blev målt ved brug af Time Domain Reflectometry, som måler dielektricitetskonstanten. Det gennemsnitlige volumetriske vandindhold over dybden blev beregnet ud fra en empirisk ligning udviklet af Topp et al. (1980). Proberne til måling af vandindhold var stålstænger ($\varnothing=6$ mm), som parvis blev placeret i forskellige dybder.

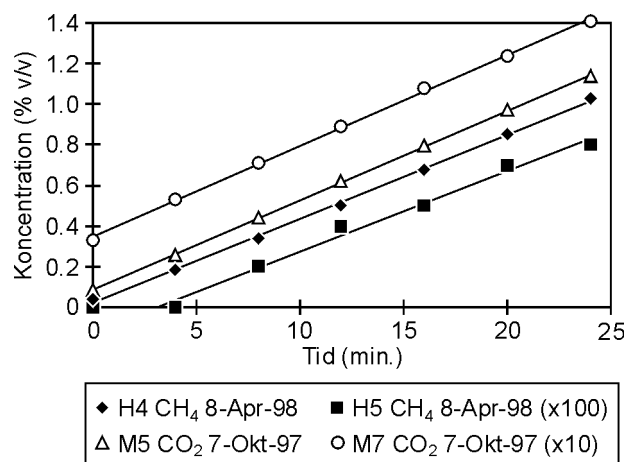
4.3. Fluxkamrene

Der blev brug simple statiske fluxkamre til at måle fluxen af gas gennem jordoverfladen – se figur 4. Fluxkamrene bestod af de øverste 20 cm af en olietønde med låg (spændebåndsfad) med en diameter på 60 cm og en højde på 20 cm, som blev hamret 6 cm ned i jorden og forseglet med bentonit langs kanten. Rammerne stod stationære gennem hele forsøgsperioden. Når der skulle laves fluxmåling, blev låget spændt fast, en lille batteridrevet propel blev startet, GC'en blev tilsluttet og startgaskoncentrationen blev målt.



Figur 4. Konstruktion og placering af fluxkammer i de øverste jordlag.

Fluxkamre giver en direkte men stedlig begrænset måling af emissionen. Fluxkamre kan have indflydelse på flowfeltet, temperatur og koncentrationer i grænsefladen mellem jord og luft, men det er en hurtig, billig og nem målemetode. Figur 5 viser koncentrationen mod tiden fra nogle tilfældige målerunder (to hvor høje fluxe og to hvor lave fluxe blev målt). Som det kan ses er R^2 høje ($R^2=0,9882-0,9998$). For samtlige kuldioxidfluxe var den gennemsnitlige R^2 på 0,99 med en standardafvigelse på 0,01, mens methanfluxene havde en gennemsnitlig R^2 på 0,98 med en standardafvigelse på 0,02. Der blev ikke observeret R^2 på mindre end 0,94 for hverken methan eller kuldioxid. Ligeledes blev der ikke observeret en afbøjning i koncentrationerne i fluxkamrene. I disse undersøgelser er fluxene derfor ikke blevet underestimeret pga. tilbagediffusion, og det kan konkluderes, at måleperioden var kort nok og fluxkammerets volumen stort nok til at måle fluxene ved Skellingsted losseplads.



Figur 5. Eksempler på koncentrationer af metan og kuldioxid som funktion af tiden i fluxkammer. Vær opmærksom på at koncentrationsaksen er ganget med 10 for M7 CO₂ d. 7/10-97 og med 100 for H5 CH₄ d. 8/4-98.

4.4. Laboratorie batchforsøg

I laboratoriet blev der udført batchforsøg i 117 ml flasker med jorde indeholdende forskellige mængder organisk materiale, som havde været eksponeret for høje methankoncentrationer. Effekten af lave temperaturer og varierende vandindhold på methanoxidation blev undersøgt. Tre af de fire undersøgte jorde var fra Skellingsted losseplads (etape D 5-25 cm's dybde og 100-115 cm's dybde samt 5-25 cm's dybde fra skrænten ved etape G). Den sidste jord var fra toplaget af Lyngby losseplads (5-25 cm under terræn).

I laboratoriet blev jordprøverne lufttørret, neddelte i morter og siet (2 mm), inden de blev brugt i forsøgene. Der blev tilsat destilleret vand for at opnå vandindhold på ca. 5, 10, 20, 25 og 35% (tørvægt basis). For hvert vandindhold blev der inkuberet flasker ved 2, 4, 10 og 15°C. Ved start var koncentrationen af metan ca. 18%, og der var tilsat ekstra ilt for at sikre, at ilten ikke blev begrænsende. Der blev udført kontrolforsøg ved 2 og 15°C (tilsat giften natriumazid) ved forskellige vandindhold for at sikre, at der ikke skete abiotiske processer i flaskerne. Oxidationsraterne blev normaliseret til gram tør jord.

Der blev målt på batchene indtil al metanen var oxideret, og det medførte, at inkubationstiden varierede fra temperatur til temperatur og fra jord til jord (7-223 døgn). Gas-koncentrationerne blev målt i gennemsnit 18 gange i hver flaske, men i nogle flasker blev der analyseret helt op til 28 gange.

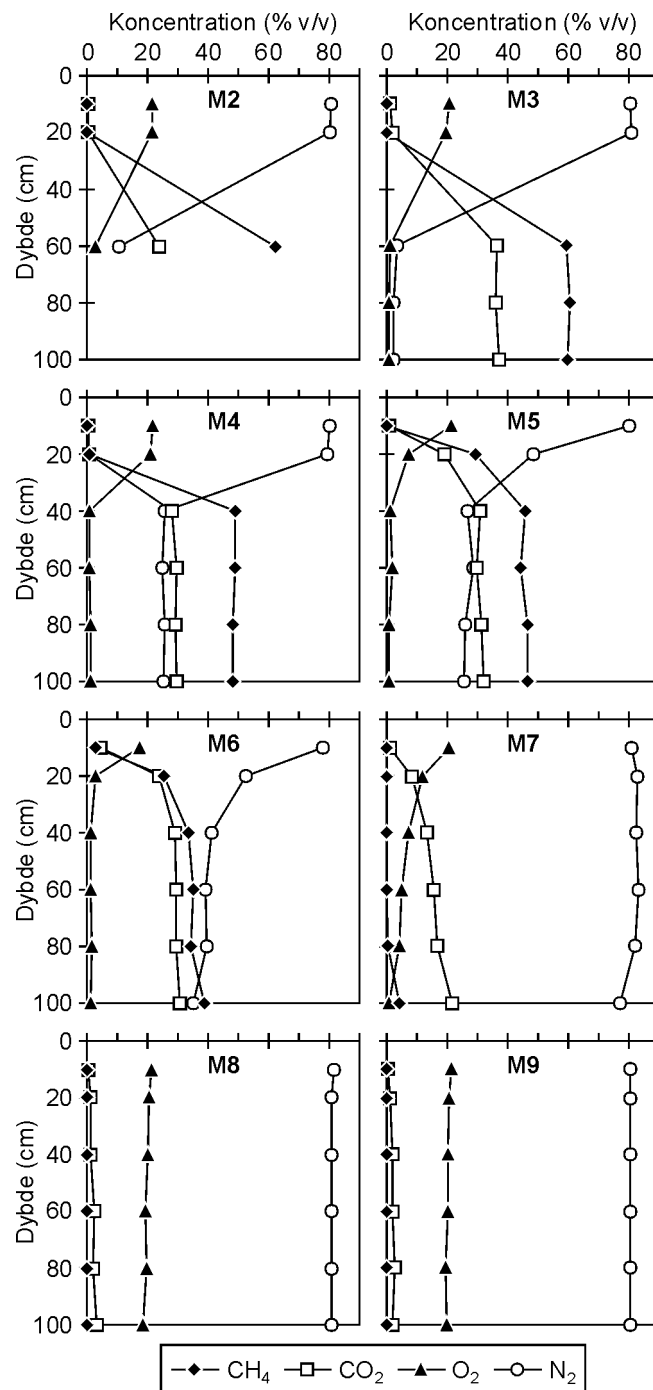
5. Gastransport i jorden

5.1. Gastransport ud gennem transecterne

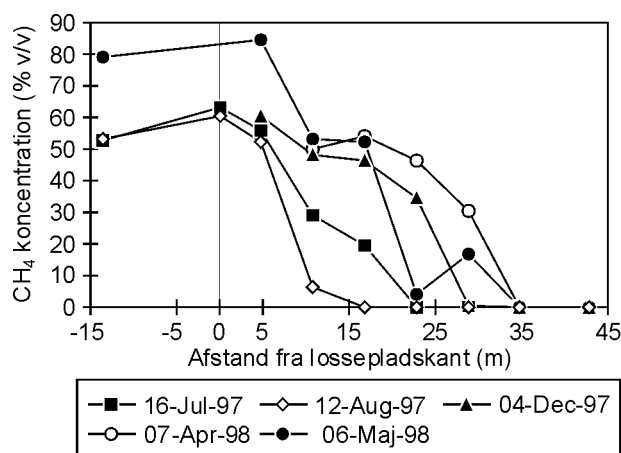
Figur 6 viser et eksempel på de målte koncentrationer over dybden ud gennem transect Mark. Station M2 var placeret ved lossepladskanten. Ved Skellingsted losseplads er den øverste del af affaldet meget hårdt og impermeabelt. I forbindelse med slutafdækningen er affaldet blevet komprimeret, og på nogle dele af lossepladsen er der deponeret slam fra spildevandsrensning, som kan danne meget impermeable lag. Dette resulterede i, at vand blev akkumuleret i toplaget, og i mange tilfælde (specielt i vinterhalvåret) var det ikke muligt at udtage gasprøver fra station 1, 2 og 3 i begge transecter. Lossepladsen er blevet fyldt til over det oprindelige terræn (1-5 m), og der er en svag hældning mellem lossepladsen og den omkringliggende jord. I forbindelse med etablering af en dyb boring ved transect Mark i februar 1998, blev det observeret, at vand løb i toplaget over affaldet og ud i den omkringliggende jord. Dette blev også observeret ved pejlinger i boringer installeret nær station M1 og M2 og nær station H1, H2 og H3.

Figur 6 viser resultaterne fra d. 4/12-97, hvor der var vand i alle prober ved station M1 (på nær 10 cm som viste atmosfærisk luft). Koncentrationerne af methan og kuldioxid steg med dybden og faldt med afstanden til lossepladsen. Ved station M8 og M9 var der atmosfærisk luft i hele jordprofilen.

På figur 7 er methankoncentrationerne 80 cm u.t. vist som funktion af afstanden til lossepladsen ved nogle forskellige målerunder. Det fremgår tydeligt af figuren, at der var store variationer i den afstand fra lossepladsen, hvor det var muligt at måle methan. Ved station M5 17 m fra lossepladskanten blev der ved disse målerunder målt mellem 0 og 60% methan. Målingerne d. 16/7 og d. 12/8 blev taget i perioder med varmt vejr og lavt vandindhold, som førte til øget diffusion af ilt ned i jorden og dermed øgede methanoxidationen (også pga. den høje temperatur). Målingen d. 4/12 blev taget i en periode med frost, og den frosne jord har formodentligt medvirket til at nedsætte den vertikale gastransport. Dermed blev gassen transporteret længere ud i transectet. Målingerne d. 7/4 og d. 6/5 blev taget i perioder med meget regn (hhv. 49 og 8 mm de foregående 4 døgn). Målinger af vandindholdet over dybden for disse målerunder viste, at topjorden havde et højere vandindhold end resten af profilet. Det øgede vandindhold i de øverste jordlag nedsatte ligesom den frosne jord den vertikale gastransport, og dermed blev gassen transporteret længere væk fra lossepladsen.



Figur 6. Koncentrationsprofiler for metan, kuldioxid, ilt og nitrogen fra transect Mark d. 4/12-97. M2 var placeret på lossepladskanten og M3 til M9 var placeret henholdsvis 5, 11, 17, 23, 29, 35 og 43 m fra lossepladskanten.



Figur 7. Methankoncentrationer 80 cm u.t. i transect Mark som funktion af afstanden til lossepladskanten fra forskellige målerunder.

5.2. Årstidsvariationer i gastransporten

For at undersøge den sæsonmæssige variation er der set på koncentrationerne 100 cm u.t. for alle stationerne. Tabel 3 viser de gennemsnitlige koncentrationer for samtlige stationer i begge transecter sammen med standardafvigelse og antallet af målinger. Sommer er defineret som maj til oktober og vinter som november til april. I transect Mark var methankoncentrationerne signifikant højere om vinteren ud gennem hele transectet. Ved station M3 var kuldioxidkoncentrationen signifikant højere om sommeren end om vinteren og længere ude i transectet ved station M6-M8 var kuldioxidkoncentrationen signifikant lavere om sommeren sammenlignet med vinteren.

I transect Hus var der kun signifikant forskel på methankoncentrationerne ved station H6. Her var koncentrationen ligeledes lavere om sommeren end om vinteren. For kuldioxid var koncentrationen signifikant højere ved station H3 og H4 og signifikant lavere ved station H6-H8 om sommeren sammenlignet med om vinteren. Forklaringen på de lavere methankoncentrationer tæt på lossepladsen om sommeren er formodentligt, at andelen af methan der blev oxideret er større om sommeren end om vinteren, hvilket også forklarer de højere kuldioxidkoncentrationer om sommeren tæt på lossepladsen. Især om vinteren havde topjorden et større vandindhold, som nedsatte den vertikale gastransport. Dette er forklaringen på de højere koncentrationer af både methan og kuldioxid længere ude i transecterne i vinterperioden.

Tabel 3. Gennemsnitlige gaskoncentrationer ved 100 cm u.t.. Standardafvigelser er givet i parentes. Sommer er maj til oktober og vinter er november til april. M1 og H1 var placeret på lossepladsen, M2 og H2 på lossepladskanten. M3 til M9 var placeret henholdsvis 5, 11, 17, 23, 29, 35 og 43 m fra lossepladskanten og H3 til H9 var placeret henholdsvis 3, 7, 11, 15, 19, 23 og 30 m fra lossepladskanten.

	Station									
	M1	M2	M3	M4	M5	M6	M7	M8	M9	
Sommer	CH ₄	45,9 (11,8)	56,8	58,3 (10,0) ⁺⁺	33,0 (12,7) ⁺⁺⁺	20,6 (16,2) ⁺	12,8 (15,2) ⁺⁺⁺	2,6 (8,1) ⁺⁺	0	0
	CO ₂	39,7 (13,8)	40,4	36,8 (8,4) ⁺	28,7 (4,8) ⁻	22,3 (8,5) ⁻	16,6 (10,6) ⁺⁺	7,9 (9,0) ⁺⁺⁺	1,6 (0,7) ⁺⁺	1,1 (0,6) ⁻
	O ₂	3,6 (5,5)	0,6	1,1 (2,5)	1,5 (2,3)	3,7 (4,7)	7,0 (7,0)	13,4 (7,6)	18,8 (1,0)	19,8 (0,6)
	N ₂	12,9 (19,5)	2,2	5,7 (8,5)	39,2 (14,8)	51,8 (23,9)	63,6 (18,6)	75,6 (10,1)	77,3 (1,3)	77,2 (1,1)
	CH ₄ /CO ₂	1,19 (0,19)	1,41	1,70 (0,67) ⁺⁺	1,13 (0,35) ⁺⁺⁺	0,75 (0,55) ⁺	0,50 (0,54) ⁺⁺⁺	0,10 (0,31) ⁺⁺	0	0
Vinter	Antal	3	1	12	14	14	14	10	6	4
	CH ₄	i.v.	i.v.	68,1 (8,5)	51,0 (2,9)	33,6 (16,8)	36,7 (8,9)	14,2 (10,4)	0	0
	CO ₂	i.v.	i.v.	31,0 (8,3)	30,8 (1,7)	23,5 (9,0)	28,5 (4,6)	22,8 (5,4)	3,4 (1,1)	1,3 (0,7)
	O ₂	i.v.	i.v.	0,2 (0,3)	0,3 (0,4)	2,4 (3,9)	1,3 (2,9)	2,2 (4,1)	17,4 (1,5)	19,8 (0,9)
	N ₂	i.v.	i.v.	1,1 (1,4)	20,1 (3,7)	42,6 (22,3)	36,0 (11,3)	62,2 (12,6)	78,4 (1,8)	78,2 (1,6)
Sommer	CH ₄ /CO ₂	i.v.	i.v.	2,41 (0,88)	1,66 (0,14)	1,30 (0,52)	1,28 (0,18)	0,55 (0,38)	0	0
	Antal	0	0	13	11	11	11	11	8	6
	Station									
	H1	H2	H3	H4	H5	H6	H7	H8	H9	
Sommer	CH ₄	56,6 (1,5)	45,7 (5,0)	49,3 (16,4) ⁻	41,7 (12,6) ⁻	2,0 (6,1) ⁻	6,5 (10,3) ⁺⁺	0	0	0
	CO ₂	40,2 (4,3)	14,4 (2,3)	20,2 (8,9) ⁺⁺⁺	34,6 (6,8) ⁺⁺⁺	14,0 (6,0) ⁻	14,2 (9,1) ⁺	3,9 (1,1) ⁺	2,7 (1,4) ⁺	1,8 (0,6) ⁻
	O ₂	0,4 (0,2)	1,5 (1,3)	1,3 (2,4)	1,6 (2,8)	8,4 (4,7)	8,8 (7,4)	14,4 (1,3)	18,3 (2,0)	19,6 (0,6)
	N ₂	3,8 (0,6)	41,3 (5,9)	30,5 (17,8)	24,1 (17,1)	75,2 (7,5)	70,8 (12,3)	77,8 (1,7)	78,0 (1,2)	77,9 (0,8)
	CH ₄ /CO ₂	1,42 (0,19)	3,25 (0,77)	3,20 (2,9) ⁺⁺	1,20 (0,27) ⁻	0,08 (0,23) ⁻	0,28 (0,43) ⁺⁺	0	0	0
Vinter	Antal	2	3	13	13	13	13	10	4	3
	CH ₄	i.v.	i.v.	44,4 (25,3)	34,6 (25,7)	4,5 (6,5)	21,7 (16,1)	0,1 (0,3)	0	0
	CO ₂	i.v.	i.v.	4,0 (3,0)	22,1 (12,3)	15,8 (6,5)	22,2 (9,2)	5,4 (1,6)	4,6 (1,2)	2,1 (0,5)
	O ₂	i.v.	i.v.	6,6 (8,8)	4,5 (6,9)	6,4 (7,0)	4,1 (6,7)	15,0 (3,4)	15,2 (2,1)	18,8 (1,0)
	N ₂	i.v.	i.v.	46,2 (19,2)	40,7 (30,6)	73,9 (6,3)	53,9 (17,5)	79,2 (3,0)	79,8 (2,3)	78,8 (1,9)
Sommer	CH ₄ /CO ₂	i.v.	i.v.	11,4 (7,8)	1,60 (1,4)	0,28 (0,37)	0,90 (0,53)	0,02 (0,06)	0	0
	Antal	0	0	8	11	11	11	11	8	6

i.v. : Ingen værdier

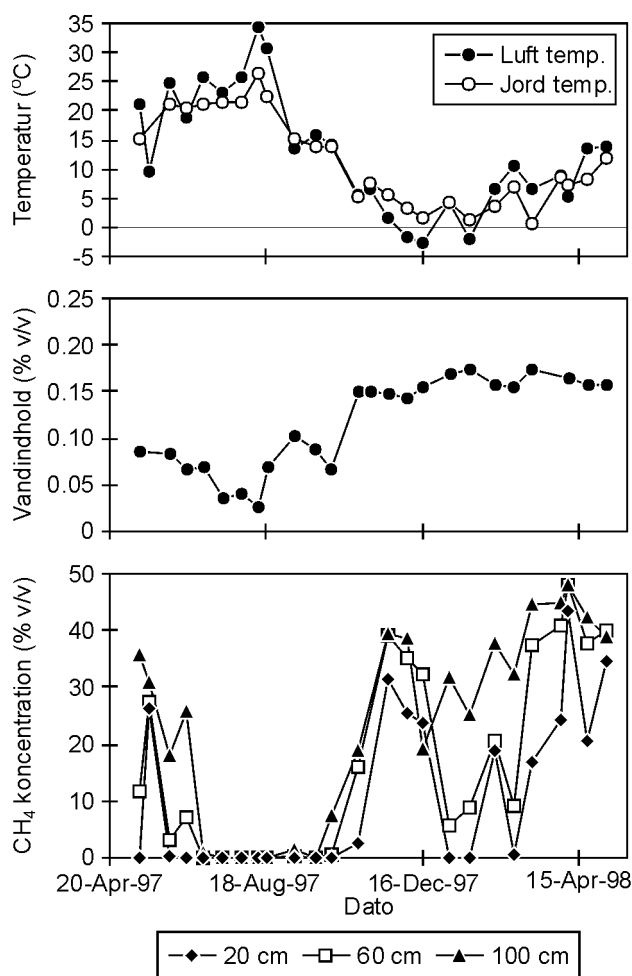
- : Ingen signifikant forskel på sommer og vinter

+ : Signifikant forskel (P<0,05)

++ : Signifikant forskel (P<0,01)

+++ : Signifikant forskel (P<0,001)

Årstidsvariationerne i gaskoncentrationerne i jorden kan også ses på figur 8, som viser methankoncentrationen i forskellige dybder ved station M6 23 m fra lossepladskanten. Luft- og jordtemperaturer ved stationen er målt samtidig med gaskoncentrationerne. Der var en invers lineær sammenhæng mellem temperaturerne og methankoncentrationerne 100 cm u.t. ved M6 ($R^2=0,40$ for luft og $0,49$ for jord). Mellem det gennemsnitlige volumetriske vandindhold og methankoncentrationerne 100 cm u.t. ved station M6 var der en lineær sammenhæng ($R^2=0,63$). Dette viser, at bl.a. temperatur og vandindhold havde indflydelse på gastransporten, men det siger ikke noget om hvilken faktor, der var den vigtigste.



Figur 8. Methankoncentrationer 20, 60 og 100 cm u.t. ved station M6 i transect Mark 23 m fra lossepladskanten som funktion af tiden. Luft- og jordtemperatur samt det gennemsnitlige volumetriske vandindhold er også vist.

Börjesson & Svensson (1997) målte sæsonvariationer i gaskoncentrationer i toplanet på en mindre svensk losseplads og fandt en tilsvarende variation med lavere koncentrationer af methan om sommeren, som blev forklaret med methanoxidation.

6. Emission af lossepladsgas

6.1. Emissionsrater

Tabel 4 viser de gennemsnitlige, minimale og maksimale fluxe af metan og kuldioxid ved hver station i hver af transecterne for den et år lange måleperiode (maj 97 til maj 98). Den maksimale methanflux var $189 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$, og de gennemsnitlige fluxe ved hver station lå mellem $<0,5$ og $25 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$. Den maksimale kuldioxidflux var $205 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$, og gennemsnittet lå mellem 5 og $69 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$ ved de enkelte stationer. Disse fluxe er meget lig fluxene, som er målt på andre ældre europæiske lossepladser uden gasindvinding (se tabel 1). Dog er de maksimale methanfluxe ved Skellingsted højere, end hvad andre har fundet (Maurice & Lagerkvist, 1997; Meadows et al., 1999), hvilket formodentligt skyldes, at der i nærværende undersøgelser er målt oftere end i de andre undersøgelser.

6.2. Årstidsvariationer

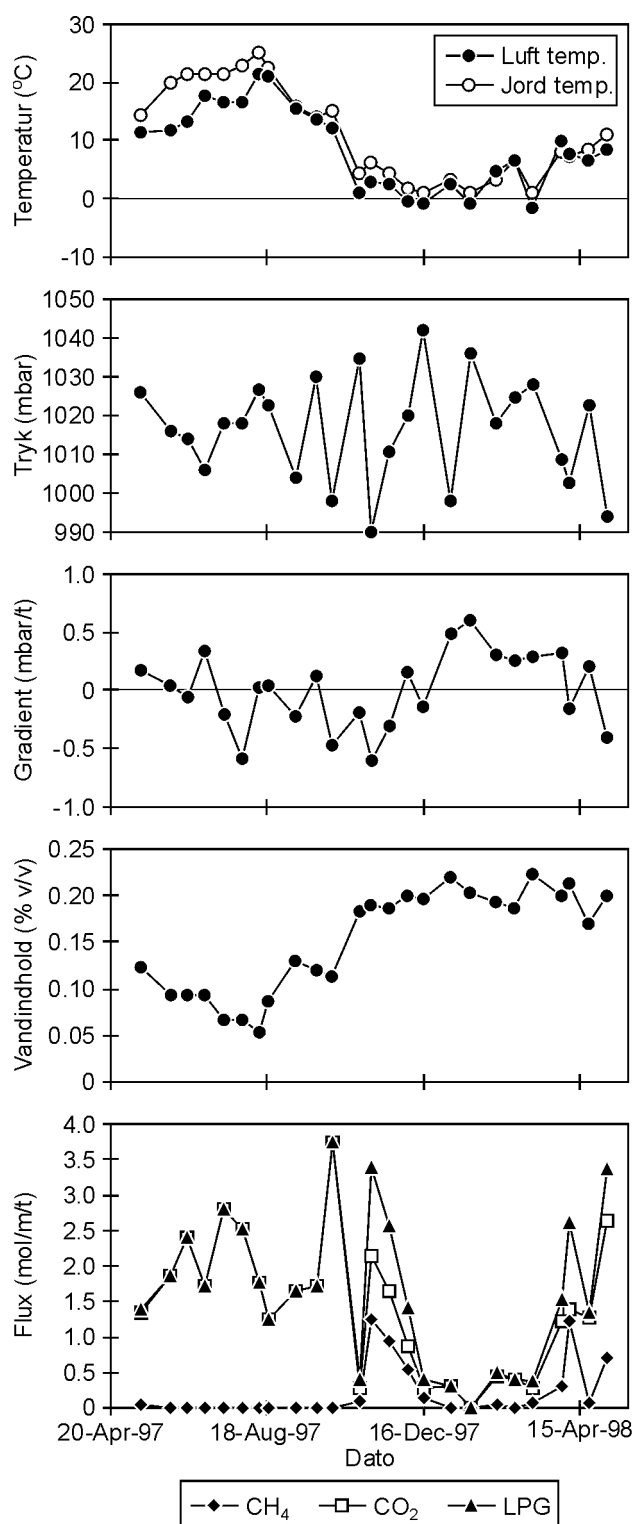
For at vurdere årstidsvariationerne i de målte emissioner er fluxene ud gennem transecterne blevet summeret op ved hver målerunde ved lineær interpolation mellem stationerne. Figur 9 viser de summerede fluxe (mol pr m af lossepladskanten pr time) for transect Mark sammen med temperatur, atmosfæretryk, trykgradient og vandindhold. Methan- og kuldioxidfluxene er lagt sammen for at finde den samlede flux af lossepladsgas (LPG). Det ses, at der faktisk aldrig blev målt methanfluxe om sommeren, og generelt var fluxen af metan mindre end kuldioxidfluxen. For begge transecter var der en statistisk signifikant sæsonvariation i fluxene. Der blev målt signifikant højere kuldioxid- og lave methanfluxe om sommeren (maj til oktober) sammenlignet med om vinteren (november til april), hvilket skyldes methanoxidationens afhængighed af temperaturen. For kuldioxidfluxene var der en lineær sammenhæng med luft- og jordtemperaturen i transecterne med R^2 mellem 0,24 og 0,46, hvilket antyder, at temperatur havde indflydelse på kuldioxidfluxene.

Det var forventeligt at vandindholdet også havde indflydelse på emissionerne – da det, som nævnt i kapitel 2.2, har indvirkning på methanoxidationen, og kan nedsætte gaspermeabiliteten i jorden. Der var en invers lineær sammenhæng mellem vandindholdet og kuldioxidfluxene med $R^2=0,39$ for transect Mark (Christophersen et al., 2001, III).

Tabel 4. Det gennemsnitlige, minimale og maksimale flux ($\text{mmol/m}^2/\text{h}$) for methan og kuldioxid og antallet af observationer ved hver station i transect Mark og Hus. M1 og H1 var placeret på lossepladsen, M2 og H2 på lossepladskanten. M3 til M9 var placeret henholdsvis 5, 11, 17, 23, 29, 35 og 43 m fra lossepladskanten og H3 til H9 var placeret henholdsvis 3, 7, 11, 15, 19, 23 og 30 m fra lossepladskanten.

Station	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Mark CH_4	Gens.	u.d.	u.d.	2,8	2,8	13,3	3,7	u.d.	u.d.
	Min	u.d.	u.d.	u.d.	u.d.	u.d.	u.d.	u.d.	u.d.
	Max	u.d.	u.d.	46,8	26,3	86,2	49,9	u.d.	u.d.
	n	7	7	24	25	25	20	9	3
Mark CO_2	Gens.	7,0	6,2	12,3	36,2	43,8	19,6	10,1	14,5
	Min	1,6	1,1	u.d.	u.d.	u.d.	u.d.	3,7	8,5
	Max	11,1	10,7	40,6	125,6	196,6	81,1	18,5	20,3
	n	7	7	24	25	25	20	9	3
Hus CH_4	Gens.	u.d.	u.d.	25,1	6,4	0,1	u.d.	u.d.	u.d.
	Min	u.d.	u.d.	u.d.	u.d.	u.d.	u.d.	u.d.	u.d.
	Max	u.d.	u.d.	189,3	120,0	1,4	u.d.	u.d.	u.d.
	n	7	9	24	24	24	17	6	1
Hus CO_2	Gens.	6,7	4,9	4,9	69,2	42,8	7,7	9,0	10,2
	Min	u.d.	u.d.	u.d.	4,1	7,8	u.d.	u.d.	10,2
	Max	12,5	8,6	12,8	202,0	204,7	15,6	14,4	10,2
	n	7	9	24	24	24	17	6	1

u.d. = Under detektionsgrænsen på $0.5 \text{ mmol/m}^2/\text{h}$



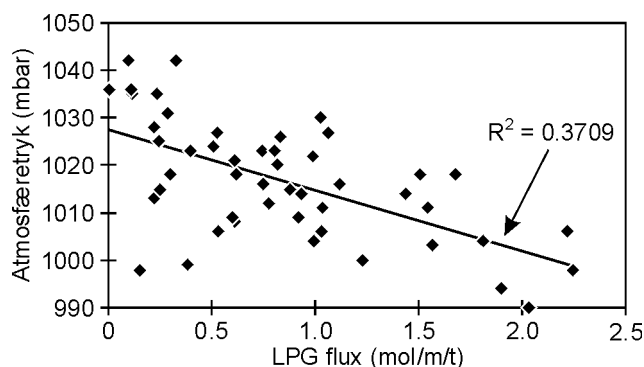
Figur 9. De summerede flux af metan, kuldioxid og lossepladsgas (LFG) i mol pr. m af lossepladskant pr. time som funktion af tiden i transect Mark. De tidlige variationer i døgnmiddel- og jordtemperaturen (10 cm u.t.), atmosfæretrykket, trykgradienten og det gennemsnitlige volumetriske vandindhold er også vist.

Ud fra ovenstående kan det fastslås, at både temperatur og vandindhold havde indflydelse på især kuldioxidfluxene, men det er ikke muligt at sige noget om hvilken faktor, der var den vigtigste.

De fundne sæsonvariationer for fluxene stemmer pænt overens med de sæsonvariationer for gaskoncentrationerne 100 cm u.t., som blev fundet tæt på lossepladsen (se afsnit 5.2). Börjesson & Svensson (1997) undersøgte også sæsonvariationen i methanfluxe på en ældre svensk losseplads. De fandt signifikant højere fluxe af methan om vinteren og skridtvis regressionsanalyser viste, at jordtemperaturen var den dominerende faktor, men trykgradienten og vandindholdet havde også signifikant indflydelse på methanemissionen. Tilsvarende fandt Boeckx et al. (1996) lave methanemission om sommeren.

6.3. Diffusiv kontra advektiv flux

Som nævnt i kapitel 2.1 er det i mange tilfælde fundet, at både diffusiv og advektiv fluxe har betydning for spredning og emission af lossepladsgas. Atmosfæretrykket vil have indflydelse på den advektive flux, idet ændringer i atmosfæretrykket vil føre til ændringer i trykgradienten mellem lossepladsen og atmosfæren. Czepiel et al. (1996b) fandt en signifikant invers sammenhæng mellem atmosfæretrykket og methanemissionen. Ud fra figur 9 er det svært at sige, om en sådan sammenhæng også eksisterer ved Skellingsted losseplads. Figur 10 viser LPG-fluxen for begge transecter som funktion af atmosfæretrykket, og den forventede inverse sammenhæng observeres: faldende tryk resulterede i stigende fluxe, men sammenhængen er dog ikke særlig tydelig.



Figur 10. Fluxen af lossepladsgas som funktion af atmosfæretrykket for begge transecter.

Ved hver målerunde blev trykforskellen mellem gasproberne og atmosfæren målt. Fra station 3 og længere væk fra lossepladsen var de målte overtryk ikke særlig store (0-40 Pa), men de viste altid den forventede øgning med dybden og fald ud gennem transectet, og der var generelt en pæn sammenhæng mellem methankoncentrationerne og overtryk-

ket (Christophersen & Kjeldsen, 2001, II). Dette viser, at lossepladsgassen inducerede et overtryk i den omkringliggende jord, hvilket er en klar indikation på advektiv flow.

Kjeldsen (1996) udførte beregninger til sammenligning af advektiv og diffusiv methanfluxe gennem et 1 m tykt top lag på en losseplads. Overtrykket inde i lossepladsen blev sat til 20 cm H₂O, og methankoncentrationen blev sat til 50%. For et sandet top lag som på Skellingsted losseplads, viste beregningerne, at den advektive methanflux var 3 størrelsesordner større end den diffusive methanflux.

Beregningerne fra Kjeldsen (1996) blev gentaget, men med en forøgning af jordlagets tykkelse til 10 m for at estimere lateral gastransport. Overtrykket i Skellingsted losseplads blev målt i to borer filteret 2 m nede i affaldet i etape I tæt ved transect Mark, og det viste mellem 3,5 og 80 cm H₂O (343-7848 Pa). I beregningerne er trykket inde i lossepladsen sat til $1,03 \cdot 10^5$ Pa, som svarer til et overtryk på 20 cm H₂O, og det er antaget, at trykket er uafhængig af ændringer i det atmosfæriske tryk. Der blev set på et fald i atmosfæretrykket på 40 mbar (4000 Pa), hvilket blev observeret flere gange under den et år lange måleperiode. Ved det høje atmosfæretryk (1030 mbar) var den advektive methanflux 2 størrelsesordner større end den diffusive methanflux i sandet jord, og ved det lave atmosfæretryk (990 mbar) var den advektive methanflux 3 størrelsesordner større end den diffusive flux.

Beregningerne blev gentaget for at se, hvilken betydning trykforskelle i den størrelsesorden, som blev målt mellem jorden og atmosfæren ved Skellingsted losseplads, har på methanfluxen. Jordtykkelsen blev igen sat til 1 m, og trykforskellen blev varieret mellem 1 og 40 Pa. Mellem 10 og 40 Pa var den advektive methanflux stadig en størrelsesorden større end den diffusive methanflux, og ved en trykforskel på 1 Pa var advektiv og diffusiv methanflux ca. lige store.

Beregninger som disse skal bruges med omtanke, da der er mange antagelser, og mange processer og faktorer der ikke er taget i betragtning (f.eks. gasflow i sprækker og revner, methanoxidation og opløsning). Beregningerne viser dog, at emissionen af lossepladsgas er påvirket af ændringer i atmosfæretrykket, og at selv ganske små trykforskelle i sandede jorde kan bevirke, at advektiv flux har større betydning end diffusiv flux.

6.4. Opløsning af gasser i nedsivende regnvand

Når lossepladsgas bevæger sig ud gennem jorden kommer den i direkte kontakt med nedsivende regnvand og jordens indhold af vand. Under ligevægt og ved lave koncentrationer styrer Henrys lov opløsningen af gasser i vand, og det er størrelsen af Henrys konstant, der er bestemmende for, hvor meget gas der opløses. Henrys konstant er hen-

holdsvis 29 og 1,1 for methan og kuldioxid, så generelt vil mere kuldioxid end methan blive opløst i nedsivende regnvand.

Ved 10°C er mætningskoncentrationen (C_M) for kuldioxid 2319 mg/l og for methan 29,56 mg/l i vand. Disse koncentrationer kan bruges til at udregne koncentrationen af gasserne i vandet (C_W) ved høje gaskoncentrationer:

$$C_W = \frac{C_M \cdot X_g}{M_g} \quad (\text{Harremoës et al., 1994})$$

Hvor X_g er gassens molbrøk og M_g er gassens molekylvægt. Beregningerne er gennemført ved to nedbørsmængder: 3 mm, som var den gennemsnitlige mængde nedbør for regnvejrdagene i måleperioden, og 35 mm som var den højeste nedbør i måleperioden. Når mængden af vand er kendt pr. tidsenhed (døgn), kan det udregnes, hvor meget gas der kan opløses, og dette kan sammenlignes med de målte gasfluxe. I beregningerne er der kun set på opløsningen i nedsivende regnvand, og der er taget hensyn til luftens naturlige indhold af kuldioxid. Det er antaget, at der har indstillet sig en ligevægt mellem gaskoncentrationen i poreluften (og dermed fluxene) og jordens vandindhold.

Tabel 5. Procentdel af methan- og kuldioxidflux der vil blive opløst under to forskellige mængder nedbør ved forskellige flux.

		CH ₄	CO ₂
3 mm/d	Gens. flux	0,4	5,9
	Max. flux	0,07	1,5
35 mm/d	Gens. flux	4,9	69
	Max. flux	0,8	17

Ved Skellingsted losseplads var de gennemsnitlige methan- og kuldioxidfluxe henholdsvis 30 og 50 mmol/m²/t for stationerne tættest på lossepladsen, og den maksimale flux var 200 mmol/m²/t for begge komponenter (Christophersen et al, 2001, III). Resultaterne for beregningerne er vist i tabel 5, som procentdel af fluxen der kan blive opløst, hvis der når at indstille sig en ligevægt. Kun max. 5 % af methanen kan blive opløst under de givne forhold, mens der for kuldioxid kan blive opløst helt op til 69% af den gennemsnitlige flux ved den store nedbørsmængde. Ved den gennemsnitlige nedbørsmængde kan der dog kun blive opløst max. 6% af kuldioxiden, og opløsningen i vandet vil derfor ikke få afgørende betydning på fluxen ved denne nedbørsmængde. Den maksimale nedbørsmængde var 7 mm på analysedagene, og det kan derfor konkluderes, at opløsning af gasserne i nedsivende regnevand ikke har haft indflydelse på de målte fluxe i disse undersøgelser.

I nogle tilfælde lader det til, at opløsning af kuldioxid i vand har haft indflydelse på de målte gaskoncentrationer ved Skellingsted losseplads. Gasproben ved station H3 60 cm u.t. var vandfyldt det meste af vinteren, og 20 cm u.t. blev der ikke detekteret gas. Men i nogle enkelte tilfælde var det muligt at udtage en gasprøve fra 100 cm u.t. Det virkede som om gassen boblede gennem vandet, og i disse prøver var indholdet af kuldioxid meget lavt (se tabel 3 under vinter) på trods af et højt indhold af metan i prøverne (Christophersen & Kjeldsen, 2001, II).

6.5. Statistiske analyser på fluxene

Ud fra figurerne i de forudgående afsnit er det svært at afgøre hvilke faktorer, der havde størst betydning for gasemissionen, men med statistiske analyser er det muligt at undersøge flere faktors indvirkning på emissionerne samtidig. Alle fluxene blev transformeret med den naturlige logaritme for at sikre varianshomogenitet. For metanfluxene gav de statistiske analyser ikke brugbare resultater pga. de mange værdier under detektionsgrænsen på 0,5 mmol/m²/t (Christophersen et al., 2001, III).

De summerede fluxe, som er vist på figur 9, blev anvendt i multiple regressionsanalyser med temperatur, vandindhold, atmosfæretryk, trykgradient og nedbør som variable. For transect Mark kunne en model indeholdende lufttemperatur, atmosfæretryk og trykgradient beskrive 70% af variationerne i kuldioxidfluxene, og lufttemperatur var den vigtigste faktor. Methanfluxene blev inkluderet i analyserne ved at lægge dem sammen med kuldioxidfluxene, og for transect Mark kunne 67% af variationerne i de samlede LPG-fluxe beskrives med de samme tre variable, men her var trykgradienten den mest betydende faktor.

For transect Hus kunne 66% af variationerne i kuldioxidfluxene beskrives med en model indeholdende jordtemperatur og atmosfæretryk, og de samme to variable kunne beskrive 63% af variationerne i LPG-fluxe. I begge tilfælde var det jordtemperaturen, der var den vigtigste faktor. Store korrelationer mellem temperatur og vandindhold bevirker, at det ikke kan udelukkes, at vandindholdet også havde indflydelse på emissionerne.

Med de statistiske analyser er det bevist, at temperatur og atmosfæretryk havde signifikant indflydelse på den samlede flux i transecterne ved hver målerunde: jo højere temperatur jo højere fluxe (specielt for kuldioxid) og jo højere atmosfæretryk jo lavere fluxe.

For transect Mark blev der udført statistiske analyser, hvor gaskoncentrationerne, overtrykkene og vandindholdene over dybden blev inkluderet. Gassen blev ikke transporteret så langt væk fra lossepladsen i transect Hus, og variationerne var større i dette tran-

sect. Derfor blev disse statistiske analyser kun udført for transect Mark. Kovariansanalyser, som kan inkludere både kvantitative og kvalitative variable, blev anvendt til at beskrive fluxen ved hver af stationerne (Christophersen et al., 2001, III). Resultaterne viste, at 82% af variationerne i kuldioxidfluxene kunne beskrives ved en model, der inkluderede variablen ”station”, som siger noget om afstanden til lossepladsen, samt gaskoncentrationerne, vandindholdet og overtrykket i de øverste jordlag, temperaturen, atmosfæretryk og nedbør.

Når methanfluxene blev inkluderet i analyserne kunne 75% af variationerne beskrives med en model indeholdende: ”station”, gaskoncentrationerne og vandindholdet i de øverste jordlag, overtrykket ved 80 cm u.t. samt atmosfæretryk og nedbør. I denne analyse var vandindholdet klart den vigtigste faktor, og når den blev udelukket var det kun muligt at beskrive 49% af variationen.

Konfidensintervaller viste, at de højeste fluxe blev målt ved station M6 23 m fra lossepladskanten efterfulgt af station M5, M4 og M3. Der var dog store overlap mellem intervallerne. Det var forventet at finde de højeste fluxe tættere på lossepladsen, men som nævnt tidligere var der meget vådt tæt ved lossepladsen pga. afstrømning i toplaget, og det er formodentlig forklaringen på, at det først var ude ved M6, at de højeste fluxe blev fundet. De laveste fluxe svarende til baggrundsfluxe blev målt ved station M1 og M2, og dette viser, at der i dette område af lossepladsen ikke var emission af gas gennem toplaget. Tilsvarende blev der ved transect Hus ikke målt fluxe ved station H1 og H2.

De statistiske analyser viste, at en forhøjelse i atmosfæretrykket, trykgradienten, vandindholdet og nedbøren, som forventet, gav mindre fluxe, mens en forhøjelse af temperaturen og overtrykket gav en forhøjet flux (temperatur dog kun for kuldioxid). Vandindhold var den vigtigste faktor til beskrivelse af gasemissionen ved Skellingsted losseplads ifølge de statistiske analyser. Til sammenligning fandt Börjesson & Svensson (1997) ved multiple regressionsanalyser, at jordtemperaturen var den vigtigste faktor, men at trykgradienten og vandindholdet også havde signifikant betydning for methane-missionen. Bogner et al. (1999) brugte ligeledes statistiske analyser til at beskrive fluxene af methan og kuldioxid ved en losseplads i Illinois, USA og regressionsanalyserne viste, at jordtemperatur og vandindhold samt koncentrationerne i de øverste jordlag havde signifikant indflydelse.

7. Lavtrykspassages indvirkning på gastransporten

Der blev udført en intensiv målekampagne mellem d. 29/10-99 kl. 18 og d. 31/10-99 kl. 13 ud fra en prognose om, at et lavtryk ville passere Danmark. Gaskoncentrationer og overtryk over dybden samt emissioner og temperaturer blev målt ca. hver 3. time (13 målerunder) ved station H4 til H7 7-19 m fra lossepladskanten i transect Hus. Der faldt ingen regn i måleperioden, og det gennemsnitlige volumetriske vandindhold var 16%. Lufttemperaturen varierede mellem 3,7 og 14°C og jordtemperaturen mellem 9,4 og 12,4°C.

7.1. Emissioner

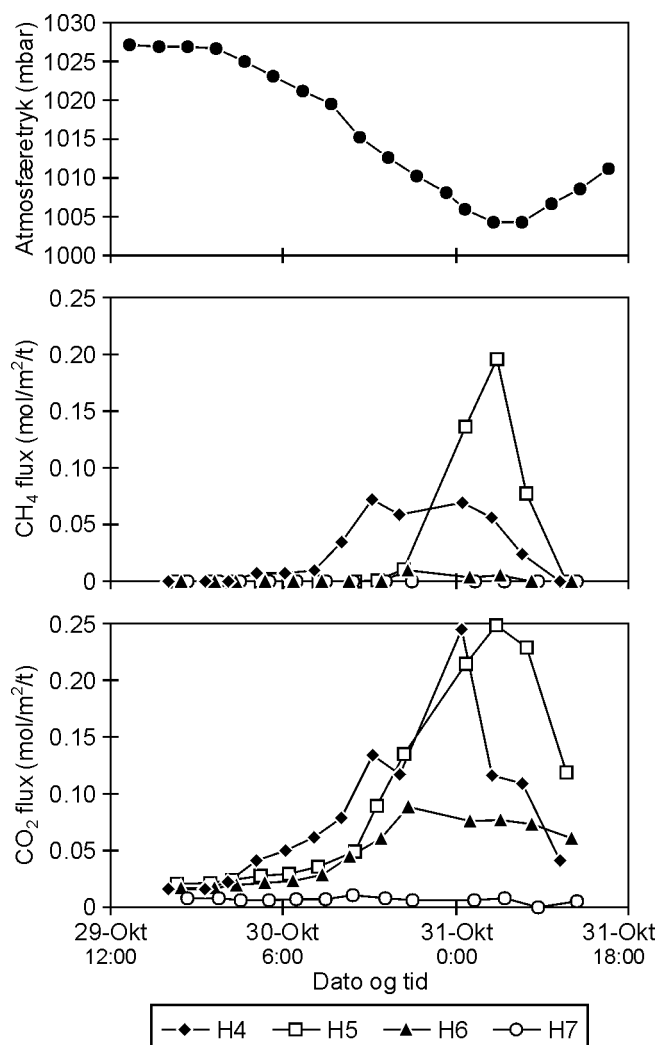
Figur 11 viser den tidslige variation i fluxene af methan og kuldioxid samt variationerne i atmosfæretrykket. Faldet i atmosfæretryk var ikke så kraftigt (i gennemsnit $-0,8$ mbar/h mellem 29/10 kl. 23 og 31/10 kl. 04), men det havde klart indflydelse på fluxene. Der var en tydelig sammenhæng mellem faldet i atmosfæretryk og stigningen i fluxene. Ved station H5 11 m fra lossepladskanten steg fluxen af methan fra under detektionsgrænsen på $0,5 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$ til $196 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$ i løbet af 14 timer. Ved station H4-H6 blev der målt højere kuldioxidfluxe end gennem den et år lange måleperiode, hvorimod der ikke målt fluxe af gas ved station H7 19 m fra lossepladskanten. For både methan og kuldioxid blev en stigning i fluxene først observeret ved station H4, så ved H5 og derefter ved station H6, som forventet ud fra forskellene i afstanden til lossepladsen.

7.2. Gas i jorden

På figur 12 er ændringerne i methan-, kuldioxid- og iltkoncentrationerne ved station H6 15 m fra lossepladskanten vist som funktion af dybden ved hver af de 13 målerunder. Som for emissionerne blev der fundet tydelig sammenhæng mellem koncentrationerne og faldet i atmosfæretryk. Alle kurverne på figur 12 ligger pænt, og viser at koncentrationerne af methan og kuldioxid stiger med faldende tryk mens iltkoncentrationen falder med faldende tryk. Specielt for methankoncentrationerne skete der store ændringer under lavtrykspassagen. I 40 cm's dybde steg koncentrationen af methan fra nær nul til 28%, da trykket var lavest for så at falde igen til 12% indenfor den 41 timers måleperiode. Dette viser, at koncentrationen af methan kan ændre sig dramatisk indenfor meget kort tid.

Det ses på figur 12, at der selv 100 cm u.t. skete væsentlige ændringer i gaskoncentrationerne under lavtrykspassagen. De største ændringer skete i methankoncentrationerne, mens ændringerne ikke var så udtalte for kuldioxidkoncentrationerne. Dette er i over-

ensstemmelse med Young (1992), der forklarer det med, at kuldioxid er mere opløselig i porevandet, som virker som en buffer for kuldioxidkoncentrationen.

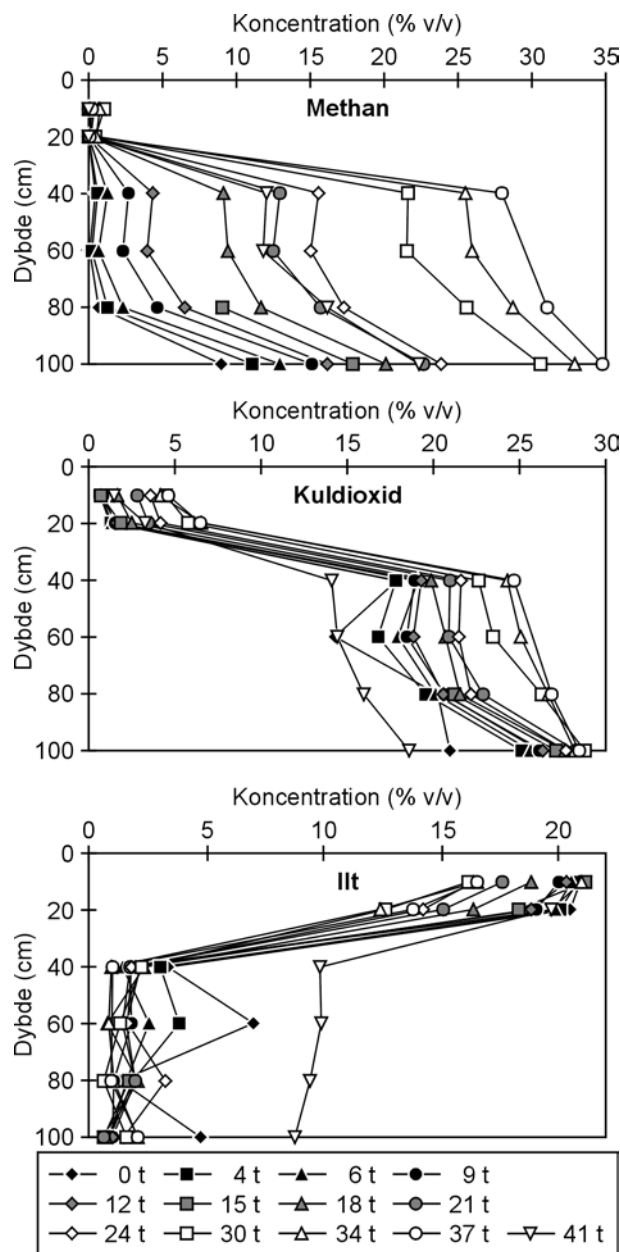


Figur 11. Fluxen af methan og kuldioxid som funktion af tiden under lavtrykspassagen ved station H4, H5, H6 og H7 henholdsvis 7, 11, 15 og 19 m fra lossepladskanten i transect Hus. Atmosfæretrykket er vist i toppen af figuren.

Der blev ikke observeret methan ved station H7 19 m fra lossepladskanten. Derimod var kuldioxidkoncentrationen højere end baggrundskoncentrationen, og der var et fald i iltkoncentrationen under lavtrykspassagen. Faldet i iltkoncentrationen skyldes sandsynligvis methanoxidation, da nitrogenkoncentrationen ved de laveste iltkoncentrationer var helt oppe på 85% (Christophersen & Kjeldsen, 2001, II).

Under lavtrykspassagen var der en korrelation mellem methankoncentrationerne og de målte overtryk, hvilket viser, at der skete en stigning i den laterale gastransport som følge af en forøget trykgradient mellem lossepladsen og atmosfæren (Christophersen &

Kjeldsen, 2001, II). Det kan derfor konkluderes, at advektiv flow var en vigtig proces ved Skellingsted losseplads, som beregningerne i afsnit 6.3 også viste.



Figur 12. Koncentrationsprofiler for methan, kuldioxid, ilt og nitrogen over tiden ved station H6 15 m fra lossepladskanten i transect Hus under lavtrykspassagen.

Ud fra den intensive målerunde under et svagt trykfald ses det, at der var en pæn overensstemmelse mellem de målte fluxe og gaskoncentrationerne i jorden. Både gaskoncentrationerne og fluxene steg når trykket faldt. Ændringerne var meget markante, og derfor kan det være svært at forudsige, hvor langt fra lossepladsen det vil være muligt at finde methan over de 5%, som er den nedre eksplosionsgrænse.

8. Methanoxidation

8.1. Laboratorie batchforsøg

I laboratoriet blev der som tidligere nævnt udført batchforsøg med tre jorde fra Skellingsted losseplads og en jord fra Lyngby losseplads. Formålet var at undersøge potentialet for methanoxidation i jorde med forskelligt indhold af organisk stof ved lave temperaturer og varierende vandindhold. I de fleste af batchene var der en lagfase inden oxidationen gik i gang. Lagfasens længde var afhængig af temperaturen, idet jo lavere temperatur jo længere var lagfasen. Selve oxidationen fulgte en 0. ordens kinetik, hvilket vil sige at den var uafhængig af methankoncentrationen (Christophersen et al., 2000, I).

8.1.1. Temperaturafhængigheden

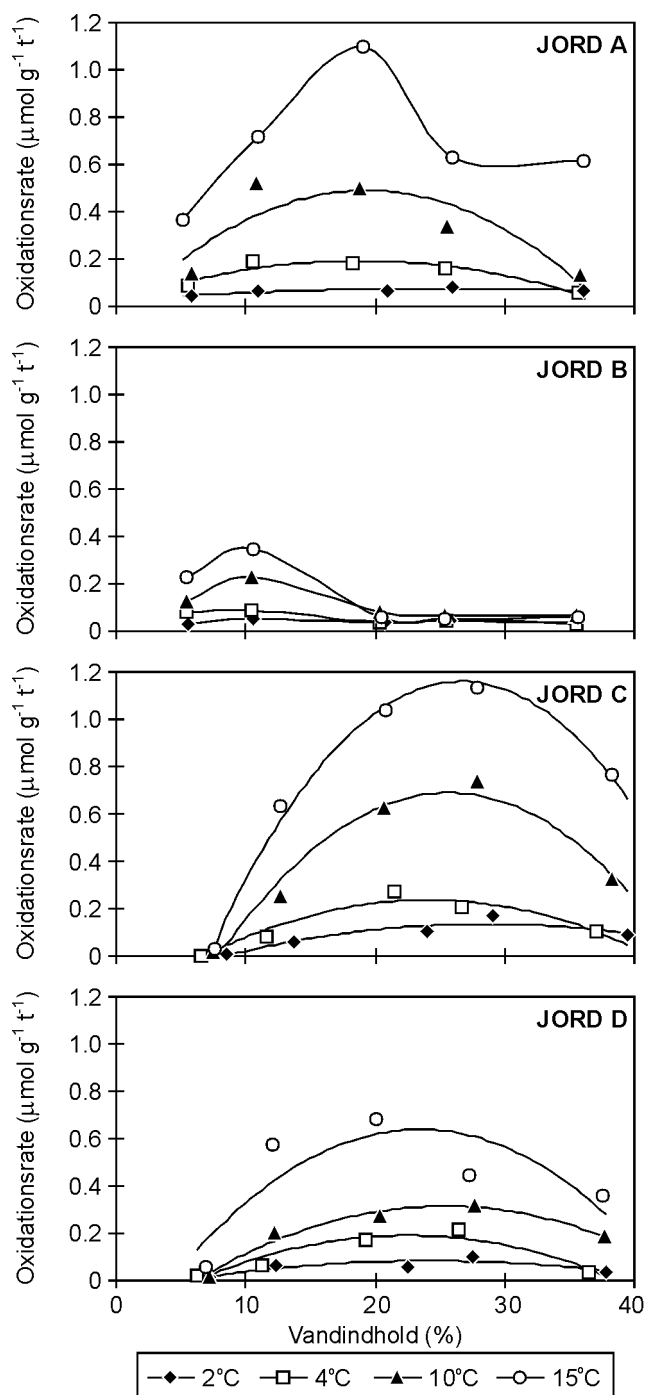
For alle jordtyper steg oxidationsraten med temperaturen, og der blev ikke fundet optimale temperaturer i disse undersøgelser. For de undersøgte fire jorde må den optimale temperatur ligge højere end 15°C, som var max. temperatur i disse undersøgelser. Figur 13 viser methanoxidationsraternes afhængighed af vandindhold og temperatur for de fire jorde. Det ses, at jord C, som havde det laveste indhold af organisk materiale, havde de laveste rater. Jord C var udtaget 100-115 cm u.t. på etape D. For alle jordtyper blev der observeret methanoxidation ved 2°C.

Q_{10} blev udregnet for jordtyperne ved de forskellige vandindhold, og resultaterne kan ses i tabel 6. Jo højere Q_{10} er, jo større er temperaturafhængigheden. Det ses, at jord B havde den laveste Q_{10} og de andre tre jorde havde næsten ens Q_{10} . Ved sammenligning med tabel 2 ses det, at de fundne Q_{10} i disse forsøg er højere, end hvad andre har fundet, hvilket indikerer, at temperatur var en meget vigtig faktor for disse jordtyper. Whalen et al. (1990) fandt ved 15°C en rate på 0,1 $\mu\text{mol/g/t}$, og Czepiel et al. (1996a) fandt en rate på ca. 0,5 $\mu\text{mol/g/t}$. Den højeste oxidationsrate i disse forsøg var 1,17 $\mu\text{mol/g/t}$ ved 15°C, hvilket antyder, at jorden ved Skellingsted losseplads var meget effektiv til at oxidere metan.

8.1.2. Vandafhængighed

Det ses på figur 13, at der blev fundet et optimalt vandindhold for alle jordtyper. Dette vandindhold er givet i tabel 6. Generelt lå de optimale vandindhold indenfor, hvad der er fundet i litteraturen – se tabel 2. Det optimale vandindhold afhang af temperaturen. Jo lavere temperaturen var, jo mindre var forskellen i oxidationsraterne ved de forskellige vandindhold. Jord B havde det laveste optimale vandindhold og jord C det højeste. Det-

te stemmer overens med, at jord B havde det laveste og jord C det højeste indhold af organisk materiale. Jo større indhold af organisk materiale jo mere vand kan jorden indeholde, inden den bliver vandmættet. Korrelationen mellem optimal vandindhold og indholdet af organisk materiale for de fire jorde gav $R^2=0,75$.



Figur 13. Methanoxidationsrater som funktion af vandindhold ved forskellige temperaturer for de fire jordtyper.

Tabel 6. Optimale vandindhold, maksimale methanoxiderationsrater og Q_{10} for de forskellige jordtyper.

		Jord A	Jord B	Jord C	Jord D
Optimal vandindhold (vægt%)	2°C	24	11 ^(†)	32	28
	4°C	19	11 ^(†)	24	23
	10°C	20	11 ^(†)	25	24
	15°C	19 ^(†)	11 ^(†)	27	24
Maksimal oxidationsrate (μmol/g/h)	2°C	0,07	0,05	0,17	0,1
	4°C	0,19	0,09	0,23	0,2
	10°C	0,51	0,23	0,67	0,29
	15°C	1,1	0,34	1,17	0,66
Q_{10} (2-15°C)	5% H ₂ O	4,28	4,16	4,91	-
	10% H ₂ O	5,69	4,1	6,21	5,91
	20% H ₂ O	7,26	-	5,25	5,07
	25% H ₂ O	4,44	-	4,81	4,85
	35% H ₂ O	5,75	-	5,58	6,55
	Gens.	5,48	4,13	5,46	5,60
	Afvigelse	1,20	0,04	0,59	0,78

(†): Aflæsning fra kurve

8.1.3. Statistik på batchforsøgene

Der blev anvendt kovariansanalyser til at beskrive variationen i de målte oxidationsrater (Christophersen et al., 2000, I). Temperatur og vandindhold blev inddraget som kvantitative faktorer og jordtype som kvalitativ faktor. For at sikre varianshomogenitet blev oxidationsraterne transformeret med den naturlige logaritme. Alle faktorerne havde signifikant indflydelse på oxidationsraterne, og følgende ligninger kan beskrive 88% af variationerne i datasættet:

$$\text{Jord A: } \ln(\text{rate}) = -3.88 + 0.163 \cdot \text{temp} + 0.140 \cdot \text{vand} - 0.0035 \cdot \text{vand}^2$$

$$\text{Jord B: } \ln(\text{rate}) = -2.51 + 0.087 \cdot \text{temp} - 0.050 \cdot \text{vand} + 0.0004 \cdot \text{vand}^2$$

$$\text{Jord C: } \ln(\text{rate}) = -8.63 + 0.170 \cdot \text{temp} + 0.492 \cdot \text{vand} - 0.0090 \cdot \text{vand}^2$$

$$\text{Jord D: } \ln(\text{rate}) = -6.38 + 0.135 \cdot \text{temp} + 0.321 \cdot \text{vand} - 0.0065 \cdot \text{vand}^2$$

rate = methanoxiderationsrate (μmol/g/t)

temp = temperatur (°C)

vand = vandindhold (% i forhold til tør jord)

Ligningerne viser, at jord B gav de laveste rater og jord C de højeste. Ud fra de statistiske analyser kan det konkluderes, at vandindhold var den faktor, der beskrev den største del af variationen i oxidationsraterne, og dermed var den vigtigste faktor i disse forsøg.

I Danmark er jordtemperaturen 25 cm u.t. (1974-1990) henholdsvis 3,0, 1,9, 1,1 og 2,0°C i december, januar, februar og marts (Jensen, 1996). Det er derfor relevant at se på methanoxidation ved disse lave temperaturer. Alle oxidationskurverne indikerede, at oxidationen fulgte 0. ordens kinetik, og de udregnede maksimale oxidationsrater kan anvendes til at beregne methanoxidationen i den aktive zone:

$$K_0 = k_0 \cdot d_a \cdot \rho_b$$

hvor K_0 er den integrerede oxidation over dybden ($\text{mol/m}^2/\text{h}$), k_0 er 0.te ordens oxidationskonstanten ($\mu\text{mol/g/t}$), d_a er den zone, hvor der sker methanoxidation (m) og ρ_b er bulk massefylden (tons/m^3). Ved 2°C blev der fundet en maksimal oxidation rate på 0,17 $\mu\text{mol/g/t}$ for jord C, som er fra topjorden på etape D ved Skellingsted losseplads. Antages det, at bulk massefylden er 1,6 tons/m^3 , og at den aktive zone er 40 cm fås $K_0 = 953 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$. Ved etape I på Skellingsted losseplads er gasproduktionen i 1997-98 estimeret til ca. 22 Nm^3/t . Hvis det antages, at denne gasmængde emitteres jævnt gennem hele tolaget på etape I, som har et areal på 15.600 m^2 , fås 31,5 $\text{mmol/m}^2/\text{t}$ for methanfluxen. Dette er væsentligt lavere end den ovenover beregnede flux, og dette viser, at selv om vinteren er det muligt, at al methan kan blive oxideret til kuldioxid ved ældre lossepladser.

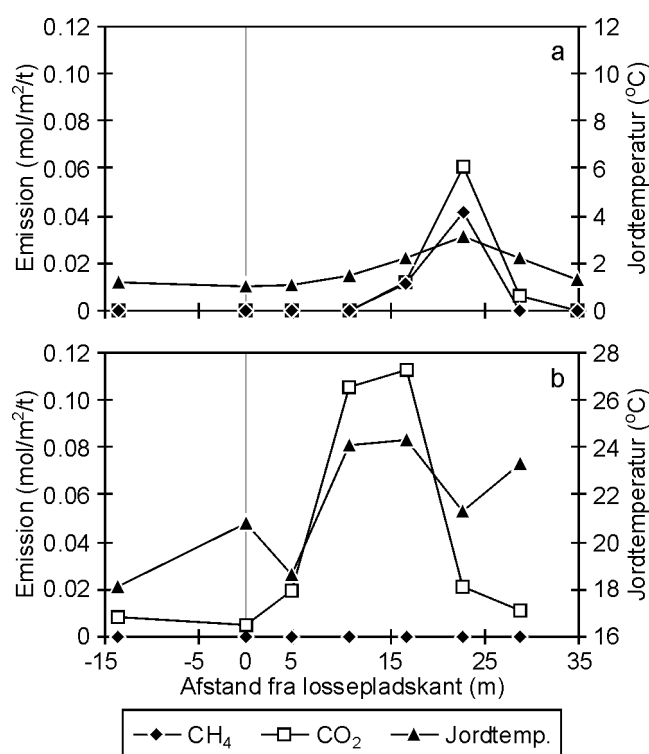
8.2. Indikationer på methanoxidation in-situ

Som nævnt i kapitel 2.2 er det svært at kvantificere methanoxidation ved feltforsøg, men der kan være en del indikatorer på, at der sker methanoxidation. En af dem er ændringer i CH_4/CO_2 -forholdet. I ren lossepladsgas vil forholdet være 1,5-2, men hvis methan bliver oxideret til kuldioxid vil forholdet blive mindre. På figur 6, som viser koncentrationsprofilerne ud gennem transect Mark d. 4/12-97, ses det, at tæt på lossepladsen var methankoncentrationen større end koncentrationen af kuldioxid. Ved station M6 23 m fra lossepladskanten var koncentrationerne af methan og kuldioxid næsten ens men CH_4/CO_2 -forholdet faldt op gennem profilet. Ved station M7 var der kun ved 1 m u.t. lidt methan men høje koncentrationer af kuldioxid (op til 22%) gennem hele profilet (Christophersen & Kjeldsen, 2001, II).

Under oxidationen sker der som nævnt en volumenreduktion, der kan resultere i nitrogenkoncentrationer højere end det atmosfæriske indhold. Dette blev observeret i flere

tilfælde. På figur 6 ved station M7 20 cm u.t. var der en forhøjning på 2% i nitrogenkoncentrationen. CH_4/CO_2 -forholdene der er vist i tabel 3, indikerer også, at der skete methanoxidation hele året, idet forholdet faldt ud gennem transecterne. Som tidligere nævnt kan opløsning af kuldioxid i vand bevirke at forholdet blev noget større end forventet, hvilket helt klart var tilfældet ved station H3 (vinter) hvor $\text{CH}_4/\text{CO}_2=11,4$ (tabel 3).

Methanoxidation er en exoterm proces, og der er i flere tilfælde observeret temperaturstigninger i områder, hvor der forgår methanoxidation. Figur 14 viser emissionen af methan og kuldioxid som funktion af afstanden til lossepladsen. Endvidere er den tilhørende temperatur i jorden 10 cm u.t. vist ved de to målerunder. Det ses, at der var en stigning i temperaturen i de områder, hvor fluxen var højst. Temperaturstigningen kan skyldes methanoxidation eller at lossepladsgassen var varmere end den omkringliggende jord. Temperaturmålinger i affaldet viste dog, at der ikke var forhøjet temperatur i selve lossepladsen, og temperaturmålinger over dybden viste også, at det kun var i de øverste jordlag, at temperaturen var forhøjet sammenlignet med baggrundstemperaturmålinger (Christophersen et al., 2001, III). Derfor kan det antages, at den forhøjede jordtemperatur skyldes methanoxidation, hvilket de høje kuldioxidfluxe også antyder.



Figur 14. Fluxene af methan og kuldioxid og jordtemperaturen (10 cm u.t.) som funktion af afstanden til lossepladsen i transect Mark (a) d. 4/12-97 og (b) d. 16/7-97.

8.3. In-situ methanoxiderationsrater

En kombination af fluxmålinger og gasprofiler kan bruges til at udregne et estimat for methanoxidationen i den øverste meter af jorden ud fra nogle boxberegninger. Det er antaget, at der ikke bliver opløst kuldioxid i nedsivende vand, og at der ikke bliver dannet noget gas i jorden. Under stationære forhold er den totale flux af lossepladsgas ved overfladen lig med fluxen af lossepladsgas i bunden af profiler ved 1 m u.t. Dermed bliver den totale flux af lossepladsgas:

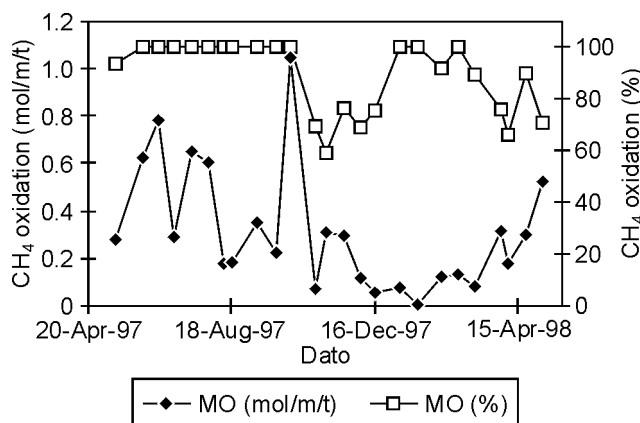
$$J_{D\text{ LPG}} = J_{D\text{ CH}_4\text{ top}} + J_{D\text{ CO}_2\text{ top}} = J_{D\text{ CH}_4\text{ bund}} + J_{D\text{ CO}_2\text{ bund}}$$

Hvor J_D er fluxen i $\text{mol/m}^2/\text{t}$. Når man kender den totale flux af lossepladsgas ved overfladen og CH_4/CO_2 -forholdet 1 m u.t. kan fluxen af methan 1 m u.t. (bund) beregnes:

$$J_{D\text{ CH}_4\text{ bund}} = (J_{D\text{ CH}_4\text{ top}} + J_{D\text{ CO}_2\text{ top}}) \cdot \left(\frac{C_{\text{CH}_4\text{ bund}}}{C_{\text{CH}_4\text{ bund}} + C_{\text{CO}_2\text{ bund}}} \right)$$

Forskellen mellem methanflux ved overfladen og i bunden af profilet er den mængde methan, som er blevet oxideret i den øverste meter af jordprofilet (MO):

$$\text{MO} = J_{D\text{ CH}_4\text{ bund}} - J_{D\text{ CH}_4\text{ top}}$$

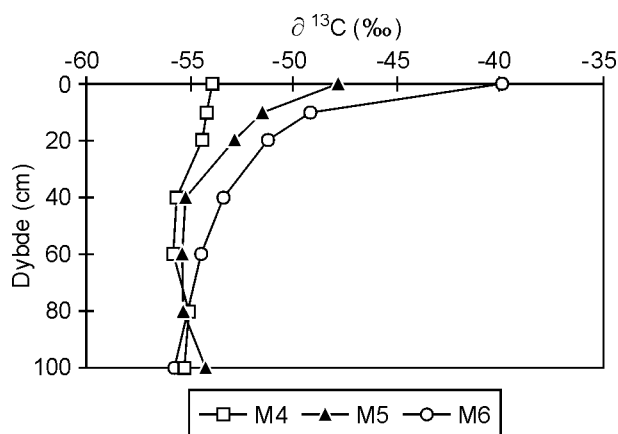


Figur 15. Beregnede estimater for methanoxidation i mol CH_4 pr. m af lossepladskanten pr. time og procent methanoxidation som funktion af tiden i transect Mark.

Figur 15 viser de beregnede methanoxidationer i mol CH_4 pr. meter af lossepladskanten pr. time (interpolation mellem stationerne ved hver målerunde) og den procentvise methanoxidation i forhold til fluxen af methan i bunden af profilet for transect Mark. Der er blevet udført beregninger, hvor baggrunds CO_2 -fluxen blev trukket fra. Baggrunds CO_2 -fluxen blev varieret mellem $<0,5$ - $10 \text{ mmol/m}^2/\text{t}$ afhængig af sæsonen. Be-

regningerne viste, at baggrunds CO₂-fluxen ikke har væsentlig indflydelse på de beregnede methanoxidationer.

Som forventet var der en sæsonvariation i methanoxidationen med højere værdier om sommeren. Gennem hele sommeren blev al metanen oxideret. Selv i vinterperioden blev der oxideret store mængder metan, og i flere tilfælde blev al metanen oxideret. Dette er i overensstemmelse med resultaterne fra batchforsøgene i laboratoriet, hvor simple beregninger også viste, at al metanen kunne blive oxideret (Christophersen et al., 2000, I). Dette blev også fundet af Maurice & Lagerkvist (1997) ved en losseplads i Nordsverige og af Nozhevnikova et al. (1993) på mindre russiske lossepladser. Igennem den et år lange måleperiode var den gennemsnitlige methanoxidation på 89%. Dette er noget højere end de gennemsnitlige andele af methanoxidation på 10-12%, som er blevet fundet af Czepiel et al. (1996a) og Chanton et al. (1999). I Chanton & Liptay (2000) blev det ud fra isotopanalyser fundet, at den årlige methanoxidation var 26% for en muldjord og 14% for en lerjord. Men andre har dog også fundet højere andele af methanoxidation. Bergamaschi et al. (1998) fandt at i gennemsnit 80-97% af metanen blev oxideret i toplanet på fire tyske og hollandske lossepladser.



Figur 16. Methans isotop $\delta^{13}\text{C}$ som funktion af dybden ved station M4, M5 and M6 hhv. 11, 17 og 23 m fra lossepladskanten i transect Mark.

Som nævnt i afsnit 2.2 er det muligt at kvantificere in-situ methanoxidationen ved at se på isotoperne i metan. Bakterierne foretrækker at omsætte de lette ^{12}C , og derved bliver den resterende metan tungere. Den 6. maj 1998 blev der udtaget prøver fra station M4, M5 og M6, som blev analyseret for methanisotoper. Resultaterne er vist på figur 16. I bunden af profilet er $\delta^{13}\text{C}$, som er andelen af ^{13}C i metanen, næsten ens (-54,2 til -55,7‰) og meget lig, hvad andre har fundet i ren lossepladsgas ifølge en sammenstilling af de publicerede værdier i Chanton et al. (1999). Ved station M4 var der ikke en særlig store stigning i $\delta^{13}\text{C}$ op mod jordoverfladen, og der foregik ikke nævneværdig methanoxidation, hvorimod der skete større methanoxidation ved station M5 og M6,

hvor flowet af lossepladsgas var mindre, og der derfor var større mulighed for at ilt kunne diffundere ned i jorden.

For at kvantificere methanoxidationen skal isotopfraktioneringsfaktoren α kendes. α er forholdet mellem hastighedskonstanterne for oxidationen af den lette og den tunge isotop. α er ikke blevet bestemt i disse forsøg. Liptay et al. (1998) fandt $\alpha=1,022$ ved 25°C. Chanton & Liptay (2000) justerede α for temperaturafhængighed svarende til 0,000435/°C. Den 6. maj var jordtemperaturen 10 cm u.t. 12°C, og ud fra ovenstående formel gav det $\alpha=1,028$. Hermed kan fraktionen af methan, der blev oxideret (f_o), beregnes:

$$f_o = \frac{\delta E - \delta A}{(\alpha - 1) \cdot 1000}$$

δE and δA er henholdsvis isotopindholdet i den emitterede gas og i den anoxiske gas (ren lossepladsgas). $\delta^{13}\text{C}$ -værdien i bunden af profilet er brugt som δA , og $\delta^{13}\text{C}$ -værdien i de forskellige dybder er brugt som δE . Som det også fremgår af figur 16 foregik den største andel af methanoxidationen i de øverste 10 cm. Ved station M4 og M5 foregik der methanoxidation i de øverste 40 cm af profilet, og ved M6 foregik der methanoxidation i hele den øverste meter af jordprofilet. Tabel 7 viser procentdelen af methan, der blev oxideret i den øverste meter af jorden ved de tre stationer. For at vurdere følsomheden overfor α er beregningerne udført ved en højere og en lavere α , som er nær yderpunkterne for, hvad der er rapporteret i litteraturen (Reeburgh, 1996). Ud fra tabel 7 kan det ses, at de ovenfor beregnede procentvise oxidationer tilsyneladende overestimerer methanoxidationen. Dette er dog kun tilfældet i de situationer, hvor der er blevet målt methanfluxe.

Tabel 7. Procent af metanen der er blevet oxideret beregnet ud fra henholdsvis isotopanalyser (forskellige værdier for fraktionerings konstanten α) og de målte flux og koncentrationer i jorden.

Station	$\alpha=1,028$	$\alpha=1,022$	$\alpha=1,031$	Beregnet
M4	5	6	4	19
M5	23	29	21	62
M6	57	72	51	72

9. Modellering af gastransport og emission

9.1. Beskrivelse af modellen

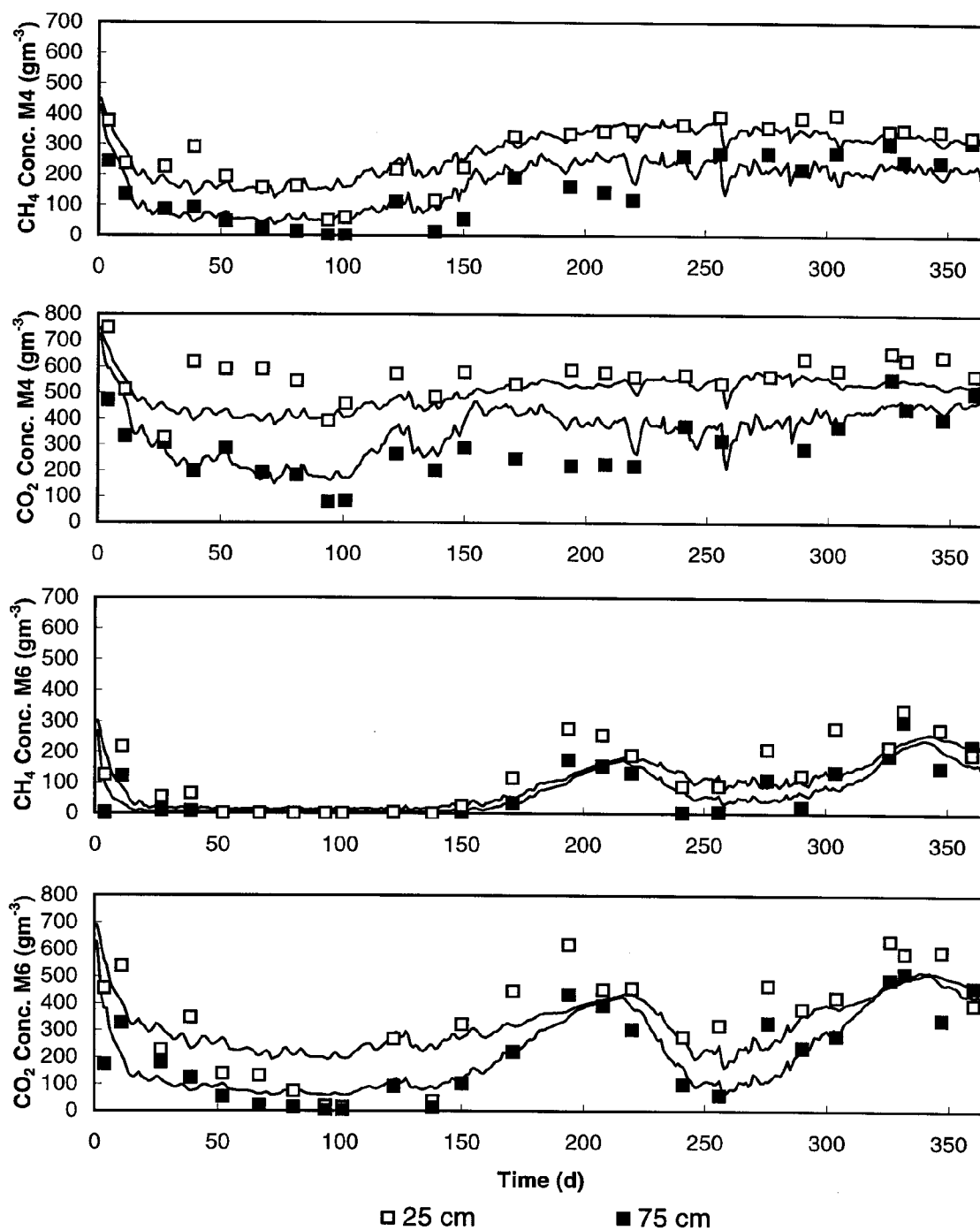
For bedre at kunne evaluere betydningen af forskellige faktorer på gastransporten i jorden omkring lossepladsen og den efterfølgende emission til atmosfæren, blev data fra transect Mark modelleret (Poulsen et al., 2001, IV). Transport, overførsel og omdannelse af metan, kuldioxid og ilt blev modelleret vha. en numerisk model baseret på explicit finite difference metoden udviklet af Poulsen et al. (1996, 1998). Modellen blev modificeret for at kunne inddrage multi-komponent transport i gasfasen.

Modellen beskriver gastransporten i hele den umættede zone, som er 16 m dyb ved transect Mark. Modelområdet er et rektangulært tværsnit vinkelret på kanten af lossepladsen. Området er 16 m dybt og 60 m langt, og blev i modellen repræsenteret ved et net bestående af 1120 blokke på hver 1,5 m længde og 0,5 m dybde. For at kunne inddrage lokale jordfysiske data, blev der lavet en boring ned til grundvandsspejlet, hvor der blev udtaget jordprøver (Christophersen & Kjeldsen, 2001, II). Gasdiffusivitet, gaspermeabilitet, mættet hydraulisk ledningsevne, jord-vand retension og jordtekstur blev målt på uforstyrrede jordprøver, og ud fra analyserne blev der udviklet empiriske ligninger for diffusivitet og permeabilitet. Indholdet af organisk materiale og kornstørrelsesfordelingen i de øverste jordlag i den dybe boring var meget lig jord A fra laboratorie batchforsøgene (Christophersen et al., 2000, I). Derfor blev temperaturafhængigheden for methanoxidationen i jord A fittet med en empirisk ligning og anvendt i modelleringen. Methanoxidationen blev antaget kun af afhænge af temperaturen, jordens indhold af organisk materiale og koncentrationen af metan og ilt.

Disse empiriske ligninger blev indbygget i den numeriske model for at simulere lossepladsgas transporten ud fra de målte vandindhold, temperaturer og indholdet af organiske materiale over dybden og tiden.

9.2. Kalibrering

Modellen blev kalibreret ud fra de målte metan- og kuldioxidkoncentrationer ved station M4 og M6 i den øverste meter af jordprofilet. Modellens numeriske net var grovere end afstanden mellem de målte koncentrationer, og derfor blev der udregnet vægtede koncentrationsgennemsnit for 0-50 cm og 50-100 cm på de målte koncentrationer.



Figur 17. De målte og med modellen beregnede koncentrationer af methan og kuldioxid ved kalibreringen 25 og 75 cm u.t. som funktion af tiden ved station M4 og M6 i transect Mark.

Den kalibrerede model blev efterfølgende verificeret ved at sammenligne de forudsagte og målte fluxe ved station M4 til M9 og de forudsagte og målte methan- og kuldioxidkoncentrationer ved station M5, M7, M8 og M9. Data fra station M3 blev ikke anvendt,

da værdierne ofte var uforventede lave pga. det høje vandindhold i området gennem store dele af året. Modellen blev kalibreret ud fra fem kalibreringsparametre:

- Konstanterne A og B som karakteriserer vindinduceret dispersion
- Parameteren K som karakteriserer methanoxideringsratens afhængighed af temperaturen
- Parameteren τ som er forsinkelsen af trykket i lossepladsens i forhold til ændringer i atmosfæretrykket
- Parameteren ΔP , som er det gennemsnitlige overtryk inde i lossepladsen

Værdierne af de fem kalibreringsparameter blev valgt, så det gav mindst afvigelse mellem de forudsagte og målte gaskoncentrationer. Det optimale valg af kalibreringsparametre gav en gennemsnitlig afvigelse på 11% for de 210 gaskoncentrationer fra station M4 og M6, som blev brugt i kalibreringen. De målte og beregnede gaskoncentrationer er vist på figur 17, og der ses en pæn overensstemmelse. Den kalibrerede model blev verificeret med methan- og kuldioxidkoncentrationer 25 og 75 cm u.t. fra station M5, M7, M8 og M9 (280 datapunkter), og det gav en afvigelse på 12%, hvilket ligeledes indikerer et godt fit (Poulsen et al., 2001, IV).

Som tidligere nævnt var der stor variation i de målte fluxe, men generelt var modellen i stand til at forudsige fluxene - bedst dog for kuldioxid (Poulsen et al., 2001, IV).

9.3. Følsomhedsanalyse

Der blev udført analyser af fem parameters indflydelse på gastransporten ved at beregne følsomheden overfor to afhængige variable: lossepladsgaskoncentrationen i de øverste 50 cm af jorden og gasfluxen ud af jorden. Følsomheden blev beregnet for hver af de følgende fem parametre ved brug af den kalibrerede numeriske gastransport-model. De fem parametre var:

- Nedbrydningskoefficienten (k_1)
- Molekylær diffusionskoefficient for gasserne (D_i)
- Gaspermeabilitet i jord (k_a)
- Udsving i variationer i atmosfæretrykket i forhold til det gennemsnitlige atmosfæretryk på årsbasis

- Udsving i variationer i det volumetriske vandindhold i forhold til det gennemsnitlige vandindhold på årsbasis

Der blev udført numeriske simulationer, hvor hver af de fem parametre blev ændret separat, og de forudsagte ændringer i de afhængige variable blev optegnet. De afhængige variables følsomhed overfor de fem parametre blev udregnet som den relative ændring i de afhængige variable divideret med den relative ændring i parametrene (Poulsen et al., 2001, IV).

Tabel 8 viser de gennemsnitlige absolutte følsomheder for methan- og kuldioxidkoncentrationer i de øverste 50 cm af jorden og for fluxe overfor de fem parametre 10 m fra lossepladskanten. Både gaskoncentrationer og fluxe var generelt meget følsomme overfor gaspermeabiliteten i jord. Følsomheden var højst om sommeren, hvor k_a var højere pga. højere luftfyldt porøsitet. Følsomheden var højere overfor methanfluxe og -koncentration end for kuldioxid.

Tabel 8. De gennemsnitlige absolutte følsomheder for methan- og kuldioxidkoncentration i de øverste 50 cm af jordprofilen og fluxene overfor de 5 parametre ved station M4 11 m fra lossepladskanten gennem den et år lange måleperiode.

Kontrollerende parameter	Koncentrationsfølsomhed		Flux følsomhed	
	(%)		(%)	
	CH ₄	CO ₂	CH ₄	CO ₂
Gaspermeabilitet	76	39	103	77
Variation i volumetrisk vandindhold	67	61	42	44
Methanoxideringsrate	17	24	27	28
Variation i atmosfærisk tryk	10	7	49	48
Molekylær diffusionskoefficient	1	0	1	1

For koncentrationerne var ændringer i det volumetriske vandindhold den næstvigtigste parameter efterfulgt af methanoxidation, hvorimod ændringer i atmosfæretrykket havde mindre indflydelse. Den høje følsomhed overfor vandindholdet kan forklares, idet vandindholdet kontrollerer gaspermeabiliteten. Derfor vil ændringer i vandindholdet også føre til ændringer i gaspermeabiliteten. Dette er formodentligt også forklaringen på, at vandindholdet blev fundet at være den vigtigste faktor for fluxene i de statistiske analyser i afsnit 6.5. Diffusion havde ingen indflydelse – hverken på koncentrationer eller på flu-

xe, hvilket er i overensstemmelse med konklusionerne i afsnit 6.3, hvor diffusiv og advektiv fluxe blev sammenlignet ved beregninger.

Ændringer i atmosfæretrykket havde større indflydelse på fluxene end på koncentrationerne, og var den næstvigtigste parameter for fluxene. Udsvingene i følsomheden var størst under hurtige ændringer i atmosfæretrykket. Det indikerer, at ændringer i atmosfæretrykket har større betydning end det absolutte tryk, som det også blev fundet ved målinger under en lavtrykspassage (se kapitel 7). Dette stemmer endvidere overens med Young (1992). Følsomheden overfor methanoxidation var negativ for methan og positiv for kuldioxid som forventet for både koncentrationer og fluxe (stor methanoxidation gav lave methanfluxe og høje kuldioxidfluxe). Følsomheden var størst om sommeren. Methanoxidation havde større indflydelse på fluxene end på koncentrationerne.

De absolutte følsomheder var generelt større ved lave værdier af gaskoncentrationer og fluxe. Derfor steg følsomheden med afstanden fra lossepladsen, hvilket Young (1992) også fandt. Dybere ned i jordprofilet var følsomheden overfor de fem parametre lille.

10. Konklusion

Gas der bliver dannet i lossepladser kan føre til forskellige effekter i omgivelserne - de vigtigste er eksplosionsfare og drivhuseffekt. Mange ældre lossepladser er placeret i nedlagte grusgrave, hvor der er direkte kontakt mellem affaldet og de omkringliggende jordlag, og dette kan give anledning til lateral gastransport.

En gennemgang af litteraturen viser, at i mange tilfælde har både diffusiv og advektiv flow betydning for spredningen af lossepladsgas. På mange lossepladser er der målt høje methanoxideringsrater i afslutningslaget, men methanoxidationens afhængighed af specielt lave temperaturer er ikke undersøgt. Derudover viser litteraturen, at både atmosfæretryk, temperatur og vandindhold er vigtige faktorer for spredning og emission af lossepladsgas.

Ved Skellingsted losseplads er der blevet udført feltforsøg, hvor de sæsonmæssige variationer i lateral gastransport og efterfølgende emission er blevet målt sammen med en række af de faktorer, der har indvirkning på gastransport og emission. Generelt blev der målt meget varierende koncentrationer af lossepladsgas fra målerunde til målerunde, hvilket viser, at den laterale gasspredning er et dynamisk system, hvor store ændringer kan forekomme.

Der var en statistisk signifikant sæsonvariation i methankoncentrationerne med høje koncentrationer om vinteren og lave om sommeren ved stationerne tæt på lossepladsen. For kuldioxid blev det omvendte observeret (statistisk signifikant) ved stationerne tæt på lossepladsen. Denne variation skyldes oxidation af methan til kuldioxid. Generelt blev lossepladsgas transporteret længere ud i transecterne om vinteren sammenlignet med om sommeren, hvilket skyldes, at specielt de øverste jordlag havde et højere vandindhold om vinteren. Det højere vandindhold nedsatte den vertikale gastransport. Sæsonvariationen i methankoncentrationerne blev yderligere bekræftet, idet der var en in-vers lineær korrelation mellem temperaturen og methankoncentrationerne og en lineær sammenhæng mellem vandindholdet og methankoncentrationerne.

Emissionerne af methan og kuldioxid var også meget variable gennem den et år lange måleperiode. For emissionerne var der en signifikant sæsonvariation med meget lave fluxe af methan om sommeren og signifikant højere fluxe om vinteren. Der var generelt altid højere fluxe af kuldioxid end af methan, og for kuldioxidfluxene var sæsonvariationen omvendt dvs. høje fluxe om sommeren og lave fluxe om vinteren. Sæsonvariationen i emissionerne skyldes methanoxidationens afhængighed af temperaturen.

Gennem hele måleperioden blev der målt overtryk i jorden i området, som var påvirket af lossepladsgas. Det indikerer, at advektiv flux har betydning for gastransporten. Dette

er i overensstemmelse med beregninger, der viste, at i en sandet jord, som ved Skellingsted losseplads, er advektiv flux en meget vigtig proces, og selv ganske små trykforskelle kan give advektiv flux, der er større end den diffusive flux.

Statistiske analyser viste, at 82% af variationerne i kuldioxidfluxene ved transect Mark kunne beskrives med en model, der inkluderede variabelen ”station”, som siger noget om afstanden til lossepladsen, gaskoncentrationerne, vandindholdet og overtrykket i de øverste jordlag samt temperaturen, atmosfæretryk og nedbør. Når methanfluxene blev inkluderet i analyserne, så det var den totale flux af lossepladsgas, der blev beskrevet med de statistiske analyser, kunne 75% af variationerne beskrives med en model indeholdende: ”station”, gaskoncentrationerne og vandindholdet i de øverste jordlag, overtrykket ved 80 cm u.t. samt atmosfæretryk og nedbør. I denne analyse var vandindholdet klart den vigtigste faktor, og når den blev udelukket blev kun 49% af variationerne i fluxene beskrevet.

De statistiske analyser viste, at en forhøjelse i atmosfæretrykket, trykgradienten, vandindholdet og nedbøren som forventet gav mindre fluxe mens en forhøjelse af temperaturen og overtrykket gav en forhøjet fluxe (temperatur dog kun for kuldioxid). Vandindhold var den vigtigste faktor til beskrivelse af gasemissionen ved Skellingsted losseplads ifølge de statistiske analyser.

Intensive målinger af emission og gas i jorden under et lavtrykspassage viste, at der var en klar sammenhæng mellem koncentrationerne i jorden, emissionerne og faldet i atmosfæretryk. I jorden ændrede specielt koncentrationen af methan sig meget indenfor kort tid, og ændringerne i fluxene af både methan og kuldioxid var også store. Koncentrationerne og fluxene steg mens atmosfæretrykket faldt. Dette viser, at transport og emission af lossepladsgas er et meget dynamisk system. Det er derfor meget svært at konkludere noget vedrørende risiko for gasekspllosioner ud fra nogle enkelte gasmålinger ved en losseplads.

Ved Skellingsted losseplads var der mange indikationer på methanoxidation: CH_4/CO_2 -forholdet faldt ud gennem transecterne og op gennem jordprofilet, der blev observeret nitrogenkoncentrationer højere end atmosfærens, og jorden var varmere i områder, hvor der foregik methanoxidation. Om sommeren blev der ikke målt methanfluxe men høje kuldioxidfluxe, og beregninger viste, at al metanen blev oxideret om sommeren. På årsbasis blev 89% af metanen oxideret. Isotopanalyser af metanen ved en analyserunde antydede dog, at den procentvise methanoxidation blev overestimeret ved boxberegningerne for de analyserunder, hvor der blev målt methanfluxe. Selv i vinterperioden blev store mængder methan oxideret, hvilket er i overensstemmelse med laboratorie batchforsøg, som viste, at methan blev oxideret ved 2°C. Batchforsøgene viste også, at

vandindholdet var den vigtigste faktor for methanoxidationen i jord fra Skellingsted losseplads.

De målte gaskoncentrationer og fluxe blev brugt som input til en numerisk gastransport model. Modellen blev brugt til at evaluere gaskoncentrationernes og fluxenes følsomhed overfor: methanoxidation, diffusion, gaspermeabilitet, atmosfæretryk og vandindhold. Simulationer viste, at såvel koncentrationerne i jorden som fluxene var mest følsomme overfor gaspermeabiliteten, der bliver kontrolleret af vandindholdet, som derfor er en meget vigtig faktor. Dette er i overensstemmelse med de statistiske analyser. For koncentrationerne i jorden var ændringer i det volumetriske vandindhold den næstvigtigste parameter efterfulgt af methanoxidation, hvorimod ændringer i atmosfæretrykket havde mindre indflydelse. Diffusion havde ingen indflydelse – hverken på koncentrationerne i jorden eller på fluxene, hvilket er i overensstemmelse med beregninger, hvor diffusiv og advektiv fluxe blev sammenlignet.

Ændringer i atmosfæretrykket havde større indflydelse på fluxene end på koncentrationerne i jorden og var den næstvigtigste parameter for fluxene. Udsvingene i følsomheden var størst under hurtige ændringer i atmosfæretrykket. Dette indikerer, at ændringer i atmosfæretrykket havde større betydning end det absolutte tryk, hvilket er i overensstemmelse med målingerne under lavtrykspassagen. Følsomheden overfor methanoxidation var negative overfor methan og positive overfor kuldioxid som forventet for både koncentrationerne i jorden og fluxene, og følsomheden var største om sommeren. Methanoxidation havde større indflydelse på fluxene end på koncentrationerne.

Ved Skellingsted losseplads blev der observeret store variationer i den laterale spredning og efterfølgende emission af lossepladsgas. Feltforsøg og beregninger viste, at advektiv flow kontrollerede gastransporten. Der blev observeret stor methanoxidation, som styrede sæsonvariationerne i både fluxene og gaskoncentrationerne i jorden. Vandindhold og ændringer i atmosfæretryk var de faktorer, som havde størst betydning for gastransport og emission. Generelt kan det konkluderes, at den laterale gastransport og emission ved Skellingsted er et meget dynamisk system, hvor store ændring vil forekomme.

11. Referencer

- Adamsen, P.S. & King, G.M. (1993) Methane Consumption in Temperate and Subarctic Forest Soils: Rate, Vertical Zonation, and Response to Water and Nitrogen. *Applied & Environmental Microbiology* **59**, 485-490.
- Bender, M. & Conrad, R. (1992) Kinetics of CH₄ oxidation in oxic soils exposed to ambient air or high CH₄ mixing ratios. *FEMS Microbiology Ecology* **101**, 261-270.
- Bergamaschi, P., Lubina, C., Konigstedt, R., Fischer, H., Veltkamp, A.C. & Zwaagstra, O. (1998) Stable isotopic signatures (delta C-13, delta D) of methane from European landfill sites. *Journal Of Geophysical Research-Atmospheres* **103** (D7), 8251-8265.
- Bergman, H., Jacobsson, A. & Lagerkvist, A. (1993) Investigations regarding biofilters for methane oxidation in landfill top covers, In: Christensen, T. H., Cossu, R. & Stegmann, R. (eds) *Sardinia 93, Proceedings of the Fourth International Landfill Symposium*. Cagliari, Italy: CISA, Environmental Sanitary Engineering Centre. pp. 717-728.
- Boeckx, P. & Van Cleemput, O. (1996) Methane oxidation in a Neutral Landfill Cover Soil: Influence of Moisture Content, Temperature, and Nitrogen-Turnover. *Journal of Environmental Quality* **25**, 178-183.
- Boeckx, P., Van Cleemput, O. & Villaralvo, I. (1996) Methane emission from a landfill and the methane oxidizing capacity of its covering soil. *Soil Biology and Biochemistry* **28**, 1397-1405.
- Bogner, J. (1992) Anaerobic burial of refuse in landfills: increased atmospheric methane and implications for increased carbon storage. *Ecological Bulletins* **42**, 98-108.
- Bogner, J., Meadows, M.P. & Czepiel, P.M. (1997a) Fluxes of methane between landfills and the atmosphere: natural and engineered controls. *Soil Use and Management* **13**, 268-277.
- Bogner, J., Spokas, K., Burton, E., Sweeney, R. & Corona, V. (1995) Landfills as atmospheric methane sources and sinks. *Chemosphere* **31**, 4119-4130.
- Bogner, J., Spokas, K. & Burton, E.A. (1997b) Kinetics of Methane Oxidation in a Landfill Cover Soil: Temporal Variations, a Whole-Landfill Oxidation Experiment,

- and Modeling of Net CH₄ Emissions. *Environmental Science & Technology* **31**, 2504-2514.
- Bogner, J., Vogt, M., Moore, C. & Gartman, D. (1987) Gas pressure and concentration gradients at the top of a landfill. In: *Proceedings of GRDCA 10th annual international landfill gas symposium, West Palm Beach, Florida, 9-13 February 1987*. Silver Spring, MD: Government Refuse Collection and Disposal Association. pp. 29-49.
- Bogner, J.E., Spokas, K.A. & Burton, E.A. (1999) Temporal variations in greenhouse gas emissions at a midlatitude landfill. *Journal of Environmental Quality* **28**, 278-288.
- Boltze, U. & de Freitas, M.H. (1997) Monitoring gas emissions from landfill sites. *Waste Management & Research* **15**, 463-476.
- Börjesson, G. & Svensson, B.H. (1997) Seasonal and diurnal methane emissions from a landfill and their regulation by methane oxidation. *Waste Management & Research* **15**, 33-54.
- Carbondioxid (1995) Speciel del 33, I: Kemikalier og sikkerhed, København, Danmark: Teknisk Forlag.
- Chanton, J. & Liptay, K. (2000) Seasonal variation in methane oxidation in a landfill cover soil as determined by an in situ stable isotope technique. *Global Biogeochemical Cycles* **14**, 51-60.
- Chanton, J.P., Rutkowski, C.M. & Mosher, B. (1999) Quantifying methane oxidation from landfills using stable isotope analysis of downwind plumes. *Environmental Science & Technology* **33**, 3755-3760.
- Christophersen, M., Linderød, L., Jensen, P.E. & Kjeldsen, P. (2000, I) Methane Oxidation at Low Temperatures in Soil Exposed to Landfill Gas. *Journal of Environmental Quality* **29**, 1989-1997.
- Christophersen, M. & Kjeldsen, P. (2001, II). Lateral gas transport in soil adjacent to an old landfill: Factors governing gas migration. *Waste Management & Research* **19**, 579-594.
- Christophersen, M., Holst, H., Chanton, J. & Kjeldsen, P. (2001, III) Lateral gas transport in soil adjacent to an old landfill: Factors governing emission and methane oxidation. *Waste Management & Research* **19**, 595-612.

- Czepiel, P.M., Mosher, P., Crill, P.M. & Harriss, R.C. (1996a) Quantifying the effect of oxidation on landfill methane emissions. *Journal of Geophysical Research* **101**, (D11), 16721-16729.
- Czepiel, P.M., Mosher, B. & Harriss, R.C. (1996b) Landfill methane emissions measured by enclosure and atmospheric tracer methods. *Journal of Geophysical Research* **101**, (D11), 16711-16719.
- Dunfield, P., Knowles, R. Dumont, R. & Moore, T.R. (1993) Methane production and consumption in temperate and subarctic peat soils: response to temperature and pH. *Soil Biology & Biochemistry* **25**, 321-326.
- Energistyrelsen (1998) *Fremme af lossepladsgas-udnyttelse i Danmark*. Miljø- og Energiministeriet, Viborg, Denmark: LFG Consults.
- Figueroa, R. A. (1993) Methane oxidation in landfill top soils, In: Christensen, T. H., Cossu, R., & Stegmann, R. (eds) *Sardinia 93, Proceedings of Fourth International Landfill Symposium*. Cagliari, Italy: CISA, Environmental Sanitary Engineering Centre. pp. 701-715.
- Gendebien, A., Pauwels, M., Constant, M., Ledrut-Damanet, M.J., Nyns, E.J., Willumsen, H.C., Butson, J., Fabry, R. & Ferrero, G.L. (1992) *Landfill gas – From environment to energy*. Luxembourg: Commission of the European Communities, Directorate-General Telecommunications, Information Industries and Innovation.
- Ghabaee, K. & Rodwell, W. R. (1989) *Landfill gas modelling. A literature survey of landfill gas generation and migration*. Dorchester, Dorset, UK: Atomic Energy Establishment, Winfrith.
- Hanson, R.S. & Hanson, T.E. (1996) Methanotrophic Bacteria. *Microbiological Reviews* **60**, 439-471.
- Harremoës, P., Henze, M., Arvin, E. & Dahi, E. (1994) *Teoretisk vandhygiejne*. 4. udgave, København, Danmark: Teknisk Forlag.
- Hodgson, A.T., Garbesi, K., Sextro, R.G. & Daisey, J.M. (1992) Soil-Gas Contamination and Entry of Volatile Organic Compounds into a House Near a Landfill. *Journal of Air & Waste Management Association* **42**, 277-283.
- Humer, M. & Lechner, P. (1999) Methane oxidation in compost cover layers on landfills. In: Christensen, T. H., Cossu, R., & Stegmann, R. (eds) *Sardinia 99. Proceedings of the Seventh International Waste and Landfill Symposium*. S. Margherita di

- Pula, Cagliari, Italy, 4-8 October 1999.* Cagliari, Italy: CISA, Environmental Sanitary Engineering Centre. pp. 403-410.
- Jones, H.A. & Nedwell, D.B. (1993) Methane emission and methane oxidation in landfill cover soil. *FEMS Microbiology Ecology* **102**, 185-195.
- Jensen, S.E. (1996) *Agroclimate at Taastrup 1961-90*. Taastrup, Danmark: Jordbrugsforlaget.
- Kerfoot, H.B. (1996) Effects of landfill gas on groundwater. In: Christensen, T.H., Cosu, R. & Stegmann, R. (eds) *Landfilling of waste: Biogas*. London, GB: E & FN Spon.
- Kightley, D., Nedwell, D.B. & Cooper, M. (1995) Capacity for Methane Oxidation in Landfill Cover Soils Measured in Laboratory-Scale Soil Microcosms. *Applied & Environmental Microbiology* **61**, 592-601.
- King, G.M. & Adamsen, P.S. (1992) Effect of Temperature on Methane Consumption in a Forest Soil and in Pure Cultures of the Methanotroph *Methylobacter rubra*. *Applied & Environmental Microbiology* **58**, 2758-2763.
- Kjeldsen, P. (1996) Landfill gas migration in soil. In: Christensen, T.H., Cossu, R. & Stegmann, R. (eds) *Landfilling of waste: Biogas*. London, GB: E & FN Spon.
- Kjeldsen, P. & Fischer, E.V. (1995) Landfill gas migration - Field investigations at Skellingsted landfill, Denmark. *Waste Management & Research* **13**, 467-484.
- Kjeldsen, P., Willumsen, H.C. & Christensen, T.H. (1998) Deponering: reaktordeponier. I: Christensen, T.H. (red.) *Affaldsteknologi*. Teknisk Forlag. København
- Koschorreck, M. & Conrad, R. (1993) Oxidation of atmospheric methane in soil - measurements in the field, in soil cores and in soil samples. *Global Biogeochemical Cycles* **7**, 109-121.
- Lelieveld, J., Crutzen, P.J. & Dentener, F.J. (1998) Changing concentration, lifetime and climate forcing of atmospheric methane. *Tellus* **50B**:128-150.
- Liptay, K., Chanton, J., Czepiel, P. & Mosher, B. (1998) Use of stable isotopes to determine methane oxidation in landfill cover soils. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres* **103**, (D7), 8243-8250.

- Lu, A.H. & Kunz, C.O. (1981) Gas-flow Model To Determine Methane Production at Sanitary Landfills. *Environmental Science & Technology* **15**, 436-440.
- Maurice, C. & Lagerkvist, A. (1997) Seasonal variation of landfill gas emissions. In: Christensen, T.H., Cossu, R. & Stegmann, R. (eds.) *Sardinia 97, Proceedings of the Sixth International Landfill Symposium, S. Margherita di Pula, Cagliari, Italy, 13-17 October 1997*. Cagliari, Italy: CISA. pp. 87-93.
- Meadows, M., Gregory, R., Fish, C. & Gronow, J. (1999). Characterising methane emissions from different types of landfill sites. In: Christensen, T.H., Cossu, R. & Stegmann R., (eds) *Sardinia 99, Proceedings of the Seventh International Waste Management and Landfill Symposium, S. Margherita di Pula, Cagliari, Italy, 4-8 October 1999*. Cagliari, Italy: CISA. pp. 25-32.
- Nelson, D.W. & Sommers, L.E. (1982) Total Carbon, Organic Carbon, and Organic Matter. p. 539-579. In: Page, A.L. et al. (ed). *Methods for Soil Analysis, part 2. Chemical and Microbiological Properties*. 2nd ed. Madison, WI: ASA and SSSA,.
- Nozhevnikova, A.N., Lifshitz, A.B. Lebedev, V.S. & Zavarzin, G.A. (1993) Emission of methane into the atmosphere from landfills in the former USSR. *Chemosphere* **26**, 401-417.
- Priemé, A. & Christensen, S. (1997) Seasonal and spatial variation of methane oxidation in a Danish spruce forest. *Soil Biology & Biochemistry* **29**, 1165-1172.
- Poulsen, T.G., Massmann, J.W. & Moldrup, P. (1996) Effects of vapor extraction on contaminant flux to atmosphere and ground water. *Journal of Environmental Engineering* **122**, 700-706.
- Poulsen, T.G., Moldrup, P., Schjønning, P., Massmann, J.W. & Hansen, J.Aa. (1998) Gas permeability and diffusivity in undisturbed soil: SVE implications. *Journal of Environmental Engineering* **124**, 979-986.
- Poulsen, T.G., Christophersen, M., Moldrup, P. & Kjeldsen, P. (2001, IV) Modelling lateral gas transport in soil adjacent to an old landfill. *Journal of Environmental Engineering* **127**, 145-154.
- Raybould, J.G. & Anderson, D.J. (1987) Migration of landfill gas and its control by grouting - a case history. *Quarterly Journal of Engineering Geology* **20**, 75-83.

- Reeburgh, W.S. (1996) "Soft spot" in the global methane budget. In: Lidstrom, M.E. & Tabita, F.R. (eds) *Microbial Growth on C1 Compounds*. Dordrecht, The Netherlands: Kluwer Academic Publishers. pp. 334-342.
- Schnell, S. & King, G.M. (1994) Mechanistic analysis of ammonium inhibition of atmospheric methane consumption in forest soils. *Applied and Environmental Microbiology* **60**, 3514-3521.
- Straka, F., Crha, J., Pavlas, M. & Musilova, M. (1997) Sub-surface landfill gas monitoring. In: Christensen, T.H., Cossu, R. & Stegmann, R. (eds) *Sardinia 97, Proceedings of the Sixth International Landfill Symposium, S. Margherita di Pula, Cagliari, Italy, 13-17 October 1997*. Cagliari, Italy: CISA. pp. 275-287.
- Topp, G.C., Davis, J.L. & Annan, A.P. (1980) Electromagnetic Determination of Soil Water Content: Measurements in Coaxial Transmission Lines. *Water Resources Research* **16**, 574-582.
- Ward, R.S., Williams, G.M. & Hills, C.C. (1996) Changes in major and trace components of landfill gas during subsurface migration. *Waste Management & Research* **14**, 243-261.
- Whalen, S.C., Reeburgh, W.S. & Sandbeck, K.A. (1990) Rapid Methane Oxidation in a Landfill Cover Soil. *Applied Environmental Microbiology* **56**, 3405-3411.
- Williams, G.M. & Aitkenhead, N. (1991) Lessons from Loscoe: the uncontrolled migration of landfill gas. *Quarterly Journal of Engineering Geology* **24**, 191-207.
- Williams, G.M., Ward, R.S. & Noy, D.J. (1999) Dynamics of landfill gas migration in unconsolidated sands. *Waste Management & Research* **17**, 327-342.
- Young, A. (1990) Volumetric changes in landfill gas flux in response to variations in atmospheric pressure. *Waste Management & Research* **8**, 379-385.
- Young, A. (1992) The Effect of Fluctuations in Atmospheric Pressure on Landfill Gas Migration and Composition. *Water, Air and Soil Pollution* **64**, 601-616.
- Young, P.J. & Parker, A. (1983) The identification and possible environmental impact of trace gases and vapours in landfill gas. *Waste Management & Research* **1**, 213-226.